

JP 3297676

*** NOTICES ***

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

(57) [Claim(s)]

[Claim 1] an empirical formula -- $100(\text{Fe}_{1-m}\text{Tm})_x\text{-y-z-n}(\text{B}_{1-p}\text{Cp})_x\text{RyTizMn}$ (one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel --) One or more sorts of elements and M which were chosen from the group which R becomes from Y (yttrium) and a rare earth metal aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, It is expressed by one or more sorts of elements chosen from the group which consists of Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, and Pb. The presentation ratio (rate of an atomic ratio) x, and y, z, m, n and p, respectively $10 < x \leq 25$ atom %, $y < 7 \leq 10$ atom %, $0.5 \leq z \leq 12$ atom %, $0 \leq m \leq 0.5$, $0 \leq n \leq 10$ atom %, and the process that prepares the molten metal of an iron machine rare earth raw material alloy which satisfies $0 \leq p \leq 0.25$, The process which it supplies [process] on a guidance means for a slideway to receive the molten metal of said account alloy horizontally, and to form the include angle of 1-80 degrees, and moves said alloy molten metal to a surface of action with a cooling roller, Said alloy molten metal is quenched with said cooling roller, and the cooling process which produces the quenching alloy containing an R₂Fe₁₄B mold compound phase is included. Production of said quenching alloy The manufacture approach of the iron machine rare earth magnet raw material alloy performed into the controlled atmosphere currently adjusted by 100 or less kPa of 0.13 or more kPas pressures.

[Claim 2] an empirical formula -- $100(\text{Fe}_{1-m}\text{Tm})_x\text{-y-z-n}(\text{B}_{1-p}\text{Cp})_x\text{RyTizMn}$ (one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel --) One or more sorts of elements and M which were chosen from the group which R becomes from Y (yttrium) and a rare earth metal aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, It is expressed by one or more sorts of elements chosen from the group which consists of Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, and Pb. The presentation ratio (rate of an atomic ratio) x, and y, z, m, n and p, respectively $10 < x \leq 25$ atom %, $y < 7 \leq 10$ atom %, $0.5 \leq z \leq 12$ atom %, $0 \leq m \leq 0.5$, $0 \leq n \leq 10$ atom %, and the process that prepares the molten metal of an iron machine rare earth raw material alloy which satisfies $0 \leq p \leq 0.25$, The process which it supplies [process] on a guidance means for a slideway to receive the molten metal of said alloy horizontally, and to form the include angle of 1-80 degrees, and moves said alloy molten metal to a surface of action with a cooling roller, Quench said alloy molten metal with said cooling roller, include the cooling process which produces the quenching alloy containing an R₂Fe₁₄B mold compound phase, and it sets at said cooling process. The manufacture approach of the iron machine rare earth magnet raw material alloy which carries out the rate of an abundance ratio of said R₂Fe₁₄B mold compound phase more than 60 volume % of said quenching alloy.

[Claim 3] The manufacture approach of the iron machine rare earth magnet raw material alloy according to claim 2 which adjusts the rotation peripheral velocity on said front face of a cooling

roller a second in the range of 5m /or more 26m/second or less, and makes below /cm the speed of supply per unit width of face of said alloy molten metal by 3kg/in said cooling process.

[Claim 4] an empirical formula -- $100(\text{Fe}_{1-m}\text{Tm})_x\text{-y-z-n}(\text{B}_{1-p}\text{Cp})_x\text{RyTizMn}$ (one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel --) One or more sorts of elements and M which were chosen from the group which R becomes from Y (yttrium) and a rare earth metal aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, It is expressed by one or more sorts of elements chosen from the group which consists of Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, and Pb. The presentation ratio (rate of an atomic ratio) x, and y, z, m, n and p, respectively $10 < x \leq 25$ atom %, $y < 7 \leq 10$ atom %, $0.5 \leq z \leq 12$ atom %, $0 \leq m \leq 0.5$, $0 \leq n \leq 10$ atom %, and the process that prepares the molten metal of an iron machine rare earth raw material alloy which satisfies $0 \leq p \leq 0.25$, The process which it supplies [process] on a guidance means for a slideway to receive the molten metal of said alloy horizontally, and to form the include angle of 1-80 degrees, and moves said alloy molten metal to a surface of action with a cooling roller, The cooling process which produces the quenching alloy which quenches said alloy molten metal with said cooling roller, and contains an R2Fe14B mold compound phase, Include and the organization containing three or more kinds of crystal phases which contain an R2Fe14B mold compound phase, an alpha-Fe phase, and a ferromagnetic iron machine boride phase at least is formed. The manufacture approach of the iron machine rare earth magnet raw material alloy which includes the process which sets the diameter of average crystal grain of 200nm or less and said alpha-Fe phase of 20nm or more, and a boride phase to 1nm or more 50nm or less for the diameter of average crystal grain of said R2Fe14B mold compound phase.

[Claim 5] an empirical formula -- $100(\text{Fe}_{1-m}\text{Tm})_x\text{-y-z-n}(\text{B}_{1-p}\text{Cp})_x\text{RyTizMn}$ (one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel --) One or more sorts of elements and M which were chosen from the group which R becomes from Y (yttrium) and a rare earth metal aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, It is expressed by one or more sorts of elements chosen from the group which consists of Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, and Pb. The presentation ratio (rate of an atomic ratio) x, and y, z, m, n and p, respectively $10 < x \leq 25$ atom %, $y < 7 \leq 10$ atom %, $0.5 \leq z \leq 12$ atom %, $0 \leq m \leq 0.5$, $0 \leq n \leq 10$ atom %, and the process that prepares the molten metal of an iron machine rare earth raw material alloy which satisfies $0 \leq p \leq 0.25$, The process which it supplies [process] on a guidance means for a slideway to receive the molten metal of said alloy horizontally, and to form the include angle of 1-80 degrees, and moves said alloy molten metal to a surface of action with a cooling roller, The cooling process which produces the quenching alloy which quenches said alloy molten metal with said cooling roller, and contains an R2Fe14B mold compound phase, The manufacture approach of an iron machine rare earth magnet raw material alloy that include and the ferromagnetic iron machine boride phase exists in the grain boundary or subgrain boundary of an R2Fe14B mold compound phase in said quenching alloy.

[Claim 6] The manufacture approach of the iron machine rare earth magnet raw material alloy according to claim 4 which forms said organization by performing heat-of-crystallization processing to said quenching alloy.

[Claim 7] Said heat-of-crystallization processing is the manufacture approach of an iron machine rare earth magnet raw material alloy including holding said quenching alloy 30 seconds or more at 550-degree-C or more temperature of 850 degrees C or less according to claim 6.

[Claim 8] The manufacture approach of an iron machine rare earth magnet raw material alloy including the process which grinds said quenching alloy before said heat-of-crystallization processing according to claim 7.

[Claim 9] Said iron machine boride phase is the manufacture approach of the iron machine rare earth magnet raw material alloy containing Fe_3B and/or Fe_{23}B_6 according to claim 4 or 5.

[Claim 10] an empirical formula -- $100(\text{Fe}_{1-m}\text{Tm})_x\text{-y-z-n}(\text{B}_{1-p}\text{Cp})_x\text{RyTizMn}$ (one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel --) One or more sorts of elements and M which were chosen from the group which R becomes from Y (yttrium) and a rare earth metal aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, It is expressed by one or more sorts of elements chosen from the group which consists of Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, and Pb. The presentation ratio (rate of an atomic ratio) x, and y, z, m, n and p, respectively $10 < x \leq 25$ atom %, $y < 7 \leq 10$ atom %, $0.5 \leq z \leq 12$ atom %, $0 \leq m \leq 0.5$, $0 \leq n \leq 10$ atom %, and the process that prepares the molten metal of an iron machine rare earth raw material alloy which satisfies $0 \leq p \leq 0.25$, The process which it supplies [process] on a guidance means for a slideway to receive the molten metal of said alloy horizontally, and to form the include angle of 1-80 degrees, and moves said alloy molten metal to a surface of action with a cooling roller, The manufacture approach of an iron machine rare earth magnet raw material alloy that quenched said alloy molten metal with said cooling roller, included the cooling process which produces the quenching alloy containing an $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ mold compound phase, and the presentation ratio p of C in said empirical formula has satisfied the relation of $0.01 \leq p \leq 0.25$.

[Claim 11] The manufacture approach of the iron machine rare earth magnet raw material alloy according to claim 10 characterized by the coagulation temperature of the compound phase which deposits first falling by 5 degrees C or more compared with the case where said presentation ratio p is zero, in the coagulation process of said alloy molten metal.

[Claim 12] The compound phase which deposits first in the coagulation process of said alloy molten metal in said cooling process is the manufacture approach of the iron machine rare earth magnet raw material alloy according to claim 11 which is a titanium boride system compound.

[Claim 13] an empirical formula -- $100(\text{Fe}_{1-m}\text{Tm})_x\text{-y-z-n}(\text{B}_{1-p}\text{Cp})_x\text{RyTizMn}$ (one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel --) One or more sorts of elements and M which were chosen from the group which R becomes from Y (yttrium) and a rare earth metal aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, It is expressed by one or more sorts of elements chosen from the group which consists of Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, and Pb. The presentation ratio (rate of an atomic ratio) x, and y, z, m, n and p, respectively $10 < x \leq 25$ atom %, $y < 7 \leq 10$ atom %, $0.5 \leq z \leq 12$ atom %, $0 \leq m \leq 0.5$, $0 \leq n \leq 10$ atom %, and the process that prepares the molten metal of an iron machine rare earth raw material alloy which satisfies $0 \leq p \leq 0.25$, The process which it supplies [process] on a guidance means for a slideway to receive the molten metal of said alloy horizontally, and to form the include angle of 1-80 degrees, and moves said alloy molten metal to a surface of action with a cooling roller, Said alloy molten metal is quenched with said cooling roller, and the cooling process which produces the quenching alloy containing an $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ mold compound phase is included. Said cooling process The manufacture approach of an iron machine rare earth magnet raw material alloy that surface center line granularity R_a makes it rotate with 10m [/second] or more surface peripheral velocity, and performs a cooling roller 20 micrometers or less.

[Claim 14] an empirical formula -- $100(\text{Fe}_{1-m}\text{Tm})_x\text{-y-z-n}(\text{B}_{1-p}\text{Cp})_x\text{RyTizMn}$ (one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel --) One or more sorts of elements and M which were chosen from the group which R becomes from Y (yttrium) and a rare earth metal aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, It is expressed by one or more sorts of elements chosen from the group which consists of Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, and Pb. The presentation ratio (rate of an atomic ratio) x, and y, z, m, n and p, respectively $10 <$

$x \leq 25$ atom %, $y < 7 \leq 10$ atom %, $0.5 \leq z \leq 12$ atom %, $0 \leq m \leq 0.5$, $0 \leq n \leq 10$ atom %, and the process that prepares the molten metal of an iron machine rare earth raw material alloy which satisfies $0 \leq p \leq 0.25$, The process which it supplies [process] on a guidance means for a slideway to receive the molten metal of said alloy horizontally, and to form the include angle of 1-80 degrees, and moves said alloy molten metal to a surface of action with a cooling roller, Quench said alloy molten metal with said cooling roller, include the cooling process which produces the quenching alloy containing an R2Fe14B mold compound phase, and it sets at said cooling process. The manufacture approach of an iron machine rare earth magnet raw material alloy of adjusting above the molten metal quenching processing speed per flow of said alloy molten metal which said cooling roller quenches within the limits of the following by 4kg/by 0.7kg/.

[Claim 15] an empirical formula -- $100(\text{Fe}_{1-m}\text{Tm})_x\text{-y-z-n}(\text{B}_{1-p}\text{Cp})_x\text{RyTizMn}$ (one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel --) One or more sorts of elements and M which were chosen from the group which R becomes from Y (yttrium) and a rare earth metal aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, It is expressed by one or more sorts of elements chosen from the group which consists of Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, and Pb. The presentation ratio (rate of an atomic ratio) x, and y, z, m, n and p, respectively $10 < x \leq 25$ atom %, $y < 7 \leq 10$ atom %, $0.5 \leq z \leq 12$ atom %, $0 \leq m \leq 0.5$, $0 \leq n \leq 10$ atom %, and the process that prepares the molten metal of an iron machine rare earth raw material alloy which satisfies $0 \leq p \leq 0.25$, The process which it supplies [process] on a guidance means for a slideway to receive the molten metal of said alloy horizontally, and to form the include angle of 1-80 degrees, and moves said alloy molten metal to a surface of action with a cooling roller, The manufacture approach of an iron machine rare earth magnet raw material alloy of quenching said alloy molten metal with said cooling roller, including the cooling process which produces the quenching alloy containing an R2Fe14B mold compound phase, and adjusting the kinematic viscosity of said alloy molten metal below to a $5 \times 10^{-6} \text{m}^2/\text{second}$.

[Claim 16] an empirical formula -- $100(\text{Fe}_{1-m}\text{Tm})_x\text{-y-z-n}(\text{B}_{1-p}\text{Cp})_x\text{RyTizMn}$ (one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel --) One or more sorts of elements and M which were chosen from the group which R becomes from Y (yttrium) and a rare earth metal aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, It is expressed by one or more sorts of elements chosen from the group which consists of Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, and Pb. The presentation ratio (rate of an atomic ratio) x, and y, z, m, n and p, respectively $10 < x \leq 25$ atom %, $y < 7 \leq 10$ atom %, $0.5 \leq z \leq 12$ atom %, $0 \leq m \leq 0.5$, $0 \leq n \leq 10$ atom %, and the process that prepares the molten metal of an iron machine rare earth raw material alloy which satisfies $0 \leq p \leq 0.25$, The process which it supplies [process] on a guidance means for a slideway to receive the molten metal of said alloy horizontally, and to form the include angle of 1-80 degrees, and moves said alloy molten metal to a surface of action with a cooling roller, The cooling process which produces the quenching alloy which quenches said alloy molten metal with said cooling roller, and contains an R2Fe14B mold compound phase, The manufacture approach of an iron machine rare earth magnet raw material alloy of including, and holding the skin temperature of said guidance means at 300 degrees C or more so that the kinematic viscosity of said alloy molten metal may not exceed a $5 \times 10^{-6} \text{m}^2/\text{second}$.

[Claim 17] an empirical formula -- $100(\text{Fe}_{1-m}\text{Tm})_x\text{-y-z-n}(\text{B}_{1-p}\text{Cp})_x\text{RyTizMn}$ (one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel --) One or more sorts of elements and M which were chosen from the group which R becomes from Y (yttrium) and a rare earth metal aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, It is expressed by one

or more sorts of elements chosen from the group which consists of Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, and Pb. The presentation ratio (rate of an atomic ratio) x, and y, z, m, n and p, respectively $10 < x \leq 25$ atom %, $y < 7 \leq 10$ atom %, $0.5 \leq z \leq 12$ atom %, $0 \leq m \leq 0.5$, $0 \leq n \leq 10$ atom %, and the process that prepares the molten metal of an iron machine rare earth raw material alloy which satisfies $0 \leq p \leq 0.25$, The process which it supplies [process] on a guidance means for a slideway to receive the molten metal of said alloy horizontally, and to form the include angle of 1-80 degrees, and moves said alloy molten metal to a surface of action with a cooling roller, It is the manufacture approach of an iron machine rare earth magnet raw material alloy that said guidance means consists of ingredients which contain aluminum $2O_3$ more than 80 volume % by quenching said alloy molten metal with said cooling roller, and including the cooling process which produces the quenching alloy containing an $R_2Fe_{14}B$ mold compound phase.

[Claim 18] The manufacture approach of the iron machine permanent magnet which includes the process which prepares the iron machine rare earth magnet raw material alloy produced by the manufacture approach of a publication by either of claims 1-17, and the process which performs heat treatment to said iron machine rare earth magnet raw material alloy.

[Claim 19] The manufacture approach of the bond magnet which includes the process which prepares the powder of the powder of the iron machine rare earth magnet raw material alloy produced by the manufacture approach of a publication by either of claims 1-17, or the iron machine permanent magnet produced by the manufacture approach according to claim 18, and the process which produces a bond magnet using said powder.

*** NOTICES ***

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the iron machine rare earth alloy magnet which has two or more ferromagnetic phases especially, and its manufacture approach about the manufacture approach of the permanent magnet used suitable for various motors or an actuator.

[0002]

[Description of the Prior Art] In recent years, in the device for household electric appliances, OA equipment, electronic autoparts, etc., much more high-performance-izing and small lightweight-ization are demanded. Therefore, about the permanent magnet used for these devices, it is required that making the engine-performance tare quantitative ratio as the whole magnetic circuit into max should be called for, for example, a residual magnetic flux density B_r should use the permanent magnet more than 0.5T (tesla). However, depending on the conventional comparatively cheap hard ferrite magnet, a residual magnetic flux density B_r cannot be carried out more than 0.5T.

[0003] As a permanent magnet which has current and the high residual magnetic flux density B_r

beyond 0.5T, the Sm-Co system magnet produced by powder-metallurgy processing is known. Except a Sm-Co system magnet, the Nd-Fe-B system sintered magnet produced by powder-metallurgy processing and the Nd-Fe-B system quenching magnet produced by the melt quenching method can demonstrate the high residual magnetic flux density Br. The former Nd-Fe-B system sintered magnet is indicated by JP,59-46008,A, and the latter Nd-Fe-B system quenching magnet is indicated by JP,60-9852,A.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] however, any of Sm and Co from which a Sm-Co system magnet serves as a raw material -- although -- since it is expensive, it has the fault that a magnet price is high.

[0005] In the case of a Nd-Fe-B system magnet, since it is included, using cheap Fe as a principal component (60 % of the weight - about 70% of the weight of the whole), compared with a Sm-Co system magnet, it is cheap, but there is a problem that the costs which the production process takes are high. One of the reasons why production process costs are high is that a large-scale facility and a great process are needed for the separation purification and the reduction reaction of Nd for which a content occupies ten whole atoms % - 15 atom % extent. Moreover, when based on powder-metallurgy processing, the number of production processes surely increases.

[0006] On the other hand, since the Nd-Fe-B system quenching magnet manufactured by the melt quenching method is obtained at the comparatively easy process of a dissolution process -> liquid cooling process -> heat treatment process, it has the advantage that process costs are cheap compared with the Nd-Fe-B system magnet by powder-metallurgy processing. However, since it is necessary to mix with resin the magnet powder produced from the quenching alloy, and to form a bond magnet in order to obtain a bulk-like permanent magnet when based on a melt quenching method, the filling factor (rate of a volume ratio) of the magnet powder occupied to the fabricated bond magnet is at most about 80%. Moreover, the quenching alloy produced with the melt quenching method is isotropy magnetically.

[0007] From the above reason, it has the problem that the Nd-Fe-B system quenching magnet manufactured using the melt quenching method has low Br compared with the Nd-Fe-B system sintered magnet of the anisotropy manufactured with powder-metallurgy processing.

[0008] As the technique of improving the property of a Nd-Fe-B system quenching magnet, it is effective to add complexly at least a kind of element chosen from the group which consists of Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, and W, and a kind of element chosen from the group which consists of Ti, V, and Cr at least as indicated by JP,1-7502,A. Although coercive force HcJ and corrosion resistance improve by addition of such an element, the effective method of improving a residual magnetic flux density Br is not learned besides improving the consistency of a bond magnet. Moreover, when the rare earth elements more than 6 atom % are contained in a Nd-Fe-B system quenching magnet, in order to raise the quenching rate of a molten metal according to many advanced technology, the melt spinning process which injects a molten metal to a cooling roller through a nozzle is used.

[0009] In the case of the Nd-Fe-B system quenching magnet, the concentration of rare earth elements has a presentation low in comparison, i.e., the near presentation of Nd_{3.8}Fe_{77.2}B₁₉ (atomic %), and the magnet ingredient which makes a Fe₃B mold compound the main phase is proposed (J.de Phys, such as R.Coehoorn, C 8 and 1998, 669-670 pages). By performing heat-of-crystallization processing to the amorphous alloy produced with the melt quenching method, this permanent magnet ingredient has the metastable structure formed from the fine crystal aggregate

with which the Nd₂Fe₁₄B phase which is Fe₃B phase and hard magnetism which are soft magnetism is intermingled, and is called the "nano composite magnet." Although having the high residual magnetic flux density Br beyond 1T is reported about such a nano composite magnet, the coercive force HcJ is comparatively as low as 160 kA/m - 240 kA/m. Therefore, use of this permanent magnet ingredient is restricted to the application from which the magnetic operating point becomes one or more.

[0010] Moreover, various metallic elements are added into the raw material alloy of a nano composite magnet. although the attempt which raises magnetic properties is made (JP,3-261104,A --) The patent No. 2727505 official report, the patent No. 2727506 official report, The international public presentation official report WO 003/03403 of international application, wcChan, and et.al."THE EFFECTS OF REFRACTORY METALS ON THE MAGNETIC PROPERTIES OF α -Fe/R₂Fe₁₄B-TYPE NANOCOMPOSITES", IEEE, Trans.Magn.No.5, INTERMAG.99, Kyongju, Korea pp.3265-3267, 1999, Sufficient "characteristic value per cost" is not necessarily acquired. Since the coercive force of the magnitude which can be equal to practical use in a nano composite magnet is not acquired, this is because sufficient magnetic properties cannot be discovered in real use.

[0011] This invention is made in view of the above-mentioned situation, and the place made into the purpose is to offer the manufacture approach of a permanent magnet that an iron machine alloy magnet with the outstanding magnetic properties with which are satisfied of the high coercive force (for example, HcJ \geq 600 kA/m) which can be equal to practical use can be manufactured cheaply, maintaining residual magnetic flux density Br \geq 0.8T.

[0012]

[Means for Solving the Problem] The manufacture approach of the iron machine rare earth magnet raw material alloy by this invention an empirical formula -- 100(Fe_{1-m}Tm)-x-y-z-n(B_{1-p}Cp) xRyTizMn (one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel --) One or more sorts of elements and M which were chosen from the group which R becomes from Y (yttrium) and a rare earth metal aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, It is expressed by one or more sorts of elements chosen from the group which consists of Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, and Pb. The presentation ratio (rate of an atomic ratio) x, and y, z, m, n and p, respectively 10< x \leq 25 atom %, y< 7 \leq 10 atom %, 0.5 \leq z \leq 12 atom %, 0 \leq m \leq 0.5, 0 \leq n \leq 10 atom %, and the process that prepares the molten metal of an iron machine rare earth raw material alloy which satisfies 0 \leq p \leq 0.25, The process which it supplies [process] on a guidance means for a slideway to receive the molten metal of said alloy horizontally, and to form the include angle of 1-80 degrees, and moves said alloy molten metal to a surface of action with said cooling roller, Said alloy molten metal is quenched with said cooling roller, and the cooling process which produces the quenching alloy containing an R₂Fe₁₄B mold compound phase is included.

[0013] In a desirable operation gestalt, said cooling process includes the process which adjusts the width of face of the flow of said alloy molten metal in predetermined magnitude along the direction of an axis of said cooling roller with said guidance means.

[0014] In a desirable operation gestalt, production of said quenching alloy is performed in a reduced pressure controlled atmosphere.

[0015] The pressure of said controlled atmosphere is adjusted in the desirable operation gestalt by 100 or less kPa of 0.13 or more kPas pressures.

[0016] With a desirable operation gestalt, the rate of an abundance ratio of said R₂Fe₁₄B mold compound phase is carried out in said cooling process more than 60 volume % of said quenching

alloy.

[0017] With a desirable operation gestalt, in said cooling process, the rotation peripheral velocity on said front face of a cooling roller is adjusted a second in the range of 5m /or more 26m/second or less, and the speed of supply per unit width of face of said alloy molten metal is made below into /cm by 3kg/.

[0018] With a desirable operation gestalt, the organization containing three or more kinds of crystal phases which contain an R2Fe14B mold compound phase, an alpha-Fe phase, and a ferromagnetic iron machine boride phase at least is formed, and the process which sets the diameter of average crystal grain of 200nm or less and said alpha-Fe phase of 20nm or more, and a boride phase to 1nm or more 50nm or less for the diameter of average crystal grain of said R2Fe14B mold compound phase is included.

[0019] In a desirable operation gestalt, the ferromagnetic iron machine boride phase exists in the grain boundary or subgrain boundary of an R2Fe14B mold compound phase.

[0020] With a desirable operation gestalt, said organization is formed by performing heat-of-crystallization processing to said quenching alloy.

[0021] With a desirable operation gestalt, said heat-of-crystallization processing includes holding said quenching alloy 30 seconds or more at 550-degree-C or more temperature of 850 degrees C or less.

[0022] In a desirable operation gestalt, the process which grinds said quenching alloy before said heat-of-crystallization processing is included.

[0023] In the desirable operation gestalt, said iron machine boride contains Fe3B and/or Fe23B6.

[0024] In a desirable operation gestalt, said element M surely contains Nb.

[0025] If it removes that Nb is not included substantially with a desirable operation gestalt, as compared with the iron machine rare earth magnet raw material alloy which has the same presentation substantially, the liquidus-line temperature of a molten metal is low 10 degrees C or more.

[0026] In a desirable operation gestalt, the content of Nb is 3% or less 0.1% or more of the whole at the rate of an atomic ratio.

[0027] In a desirable operation gestalt, the presentation ratio p of C in said empirical formula has satisfied the relation of $0.01 \leq p \leq 0.25$.

[0028] With a desirable operation gestalt, kinematic viscosity of said alloy molten metal at the time before said guidance means is supplied is made below into 5×10^{-6} (m²/second).

[0029] With a desirable operation gestalt, it is characterized by the coagulation temperature of the compound phase which deposits first falling by 5 degrees C or more compared with the case where said presentation ratio p is zero, in the coagulation process of said alloy molten metal.

[0030] With a desirable operation gestalt, the compound phase which deposits first in the coagulation process of said alloy molten metal is a titanium boride system compound in said cooling process.

[0031] In a desirable operation gestalt, surface center line granularity Ra rotates a cooling roller 20 micrometers or less with 10m [/second] or more surface peripheral velocity, and performs said cooling process.

[0032] With a desirable operation gestalt, the molten metal quenching processing speed per flow of said alloy molten metal which said cooling roller quenches is adjusted within the limits of the following by 4kg/above by 0.7kg/in said cooling process.

[0033] With a desirable operation gestalt, the width of face of one flow of said alloy molten

metal is adjusted to 5mm or more less than 20mm with said guidance means in said cooling process.

[0034] With a desirable operation gestalt, the kinematic viscosity of said alloy molten metal is adjusted below to a $5 \times 10^{-6} \text{m}^2/\text{second}$.

[0035] With a desirable operation gestalt, the skin temperature of said guidance means is held at 300 degrees C or more so that the kinematic viscosity of said alloy molten metal may not exceed a $5 \times 10^{-6} \text{m}^2/\text{second}$.

[0036] Thickness of a quenching alloy is set to 50 micrometers or more 200 micrometers or less with a desirable operation gestalt.

[0037] In the desirable operation gestalt, said guidance means consists of ingredients which contain aluminum 2O3 more than 80 volume %.

[0038] In the desirable operation gestalt, said cooling roller uses the base material currently formed from the ingredient which has the thermal conductivity of 50 or more W/m/K.

[0039] In the desirable operation gestalt, said cooling roller has the base material formed from the alloy of carbon steel, a tungsten, iron, copper, molybdenum, beryllium, or a copper system.

[0040] In a desirable operation gestalt, it is characterized by performing chromium, nickel, or plating that combined them in the front face of the base material of said cooling roller.

[0041] The manufacture approach of the iron machine permanent magnet by this invention includes the process which prepares the quenching alloy produced by the above-mentioned manufacture approach, and the process which performs heat treatment to said quenching alloy.

[0042] The manufacture approach of the bond magnet by this invention includes the process which prepares the powder of the powder of the alloy produced by the manufacture approach of one of the above, and the process which produces a bond magnet using said powder.

[0043] the quenching alloy by this invention -- an empirical formula -- $100(\text{Fe}1-\text{mTm})-\text{x-y-z-nQxRyTizMn}$ (one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel --) One or more sorts of elements and R which were chosen from the group which Q becomes from B and C a rare earth metal element and M aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Ga, Zr, Nb, Mo, Hf, It is expressed by the element more than a kind chosen from the group which consists of Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag. The presentation ratio (rate of an atomic ratio) x, and y, z, m and n, respectively $10 < x \leq 20 \text{ atom \%}$, It is the quenching alloy with which are satisfied of $y < 6 \leq 10 \text{ atom \%}$, $0.5 \leq z \leq 6 \text{ atom \%}$, $0 \leq m \leq 0.5$, and $0 \leq n \leq \text{pentatomic \%}$, and thickness is within the limits of 50 micrometers or more 200 micrometers or less, and it is characterized by forming the crystalline structure in two end faces which intersect perpendicularly with the thickness direction.

[0044] In the desirable operation gestalt, as for said crystalline structure, mean particle diameter contains the ferromagnetic boride phase of 50nm or less of 1nm or more, and the with a 20nm or more mean particle diameter [200nm or less] $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ mold compound phase.

[0045] With a desirable operation gestalt, an amorphous part exists in the field inserted into the crystalline structure in said both-ends side.

[0046] In a desirable operation gestalt, thickness is 80 micrometers or more.

[0047] the quenching alloy by this invention -- an empirical formula -- $100(\text{Fe}1-\text{mTm})-\text{x-y-z-nQxRyTizMn}$ (one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel --) One or more sorts of elements and R which were chosen from the group which Q becomes from B and C a rare earth metal element and M aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Ga, Zr, Nb, Mo, Hf, It is expressed by the element more than a kind chosen from the group which consists of Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag. The presentation ratio x, and y, z, m and n, respectively

10 < x ≤ 20 atom %, It is the quenching alloy with which are satisfied of y < 6 ≤ 10 atom %, 0.5 ≤ z ≤ 6 atom %, 0 ≤ m ≤ 0.5, and 0 ≤ n ≤ pentatomic %, and thickness is within the limits of 60 micrometers or more 150 micrometers or less, and recoil permeability is two or less [1.1 or more].

[0048] the magnetic powder by this invention -- an empirical formula -- 100(Fe_{1-m}Tm)_{x-y-z-n}Q_xR_yTi_zMn (one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel --) One or more sorts of elements and R which were chosen from the group which Q becomes from B and C a rare earth metal element and M aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Ga, Zr, Nb, Mo, Hf, It is expressed by the element more than a kind chosen from the group which consists of Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag. The presentation ratio x, and y, z, m and n, respectively 10 < x ≤ 20 atom %, It is the magnetic powder with which are satisfied of y < 6 ≤ 10 atom %, 0.5 ≤ z ≤ 6 atom %, 0 ≤ m ≤ 0.5, and 0 ≤ n ≤ pentatomic %, and the ratio of major-axis size [as opposed to 60 micrometer or more 110 micrometers or less and minor-axis size in mean particle diameter] is one or less [0.3 or more], and coercive force H_{cJ} is 600 or more kA/m.

[0049]

[Embodiment of the Invention] The manufacture approach of the permanent magnet by this invention cools the iron machine alloy molten metal containing Fe, B, R (one or more sorts of rare earth metal elements containing Y), and Ti in a reduced pressure ambient atmosphere by the strip cast method, and produces the quenching alloy which contains a detailed R₂Fe₁₄B mold compound phase by it. And heat treatment to a quenching alloy is performed if needed after that, and the amorphous substance which remained in the quenching alloy is crystallized.

[0050] The strip cast method is the approach of producing the thin band of a quenching alloy by contacting an alloy molten metal on the surface of a cooling roller, and cooling an alloy molten metal. In this invention, the cooling roller which rotates at high speed compared with the conventional strip cast method performs quenching and coagulation of an alloy molten metal. Although a cooling rate is low compared with the melt spinning process to which the strip cast method injects an alloy molten metal on the surface of a cooling roller using a nozzle orifice, since a quenching alloy thin band wide width of face and comparatively thick is producible, it excels in mass-production nature.

[0051] According to this invention, most alpha-Fe of soft magnetism is not deposited in a quenching alloy, and the crystalline structure which has a detailed R₂Fe₁₄B mold compound phase or the organization which has a detailed R₂Fe₁₄B mold compound phase, and the organization where the amorphous phase was intermingled are produced. The compound-die permanent magnet of the high performance which controlled big and rough-ization of an R₂Fe₁₄B mold compound phase, set the mean particle diameter to 20nm or more 150nm or less by this even if it was after heat treatment, and soft magnetism phases, such as an alpha-Fe phase, distributed minutely can be obtained. Moreover, a detailed soft magnetism phase exists in the grain boundary or subgrain boundary of an R₂Fe₁₄B mold compound phase, and an exchange interaction is strengthened between configuration phases.

[0052] If it is going to produce conventionally the quenching alloy which cools the alloy molten metal which has the presentation (namely, presentation excluding Ti from the presentation of this invention) which is similar so that the target presentation of this invention, and contains many R₂Fe₁₄B mold compound phases, the alloy organization where alpha-Fe deposited mostly will be obtained. For this reason, there was a problem that alpha-Fe will make it big and rough by subsequent heat-of-crystallization processing. If soft magnetism phases, such as alpha-Fe, make it big and rough, a magnet property will deteriorate greatly and the permanent magnet which is

equal to practical use will not be obtained at all.

[0053] When comparatively few (below 10 atom %), according to [there are comparatively many contents of boron like the raw material alloy presentation used especially by this invention, and] the conventional technique, rare earth elements R If it is going to produce a rapid solidification alloy with which the cooling rate of an alloy molten metal is fully reduced, and the rate of a volume ratio of an R2Fe14B mold compound phase exceeds 60% Many alpha-Fe or its precursor deposited in addition to the R2Fe14B mold compound phase, by subsequent heat-of-crystallization processing, big and rough-ization of an alpha-Fe phase advanced, and the magnet property has deteriorated greatly.

[0054] In order to have increased the coercive force of a nano composite magnet conventionally from the above thing, the cooling rate of an alloy molten metal was raised using the melt spinning process, and after changing into the condition that most rapid solidification alloys are occupied with an amorphous phase, common sense that it is desirable forming the organization made detailed by homogeneity by heat-of-crystallization processing from the amorphous phase existed. this should perform crystallization from an amorphous phase by the heat treatment process which is easy to control, in order to obtain a nano composite magnet with the alloy organization which the detailed crystal phase distributed -- ** -- it is because it thought.

[0055] For this reason, after producing the rapid solidification alloy which makes an amorphous phase the main phase by adding La excellent in amorphous generation ability into a raw material alloy, and quenching the molten metal of that raw material alloy, Both Nd2Fe14 B phase and an alpha-Fe phase are deposited and grown up by heat-of-crystallization processing. The technique which makes [about dozens of nm] any phase detailed is reported (). [wcChan,] [et.al."THE EFFECTS OF REFRACTORY METALS ON THE MAGNETIC PROPERTIES] OF alpha-Fe/R2Fe14B-TYPE NANOCOMPOSITES", IEEE, Trans.Magn.No.5, INTERMAG.99, Kyongiu, Korea pp.3265-3267, 1999. In addition, this paper is teaching the desirable thing, when that minute amount addition (2at%) of refractory metal elements, such as Ti, raises a magnet property and making the presentation ratio of Nd which is rare earth elements increase from 9.5at(s)% to 11.0at(s)% make detailed both Nd2Fe14 B phase and an alpha-Fe phase. Addition of the above-mentioned refractory metal controls generation of boride (R2Fe 23B3 and Fe3B), and it is performed in order to produce the magnet which consists only of 2 of Nd2Fe14 B phase and an alpha-Fe phase phases.

[0056] The quenching alloy for the above-mentioned nano composite magnets is produced using a nozzle by the melt spinning process which injects an alloy molten metal on the front face of the cooling roller which rotates at high speed. Since a very quick cooling rate is obtained when based on a melt spinning process, it is suitable for producing an amorphous quenching alloy.

[0057] On the other hand, in this invention, although an alloy molten metal is cooled using the strip cast method at a rate later than the cooling rate in the conventional melt spinning process, by work of an alloying element Ti, the deposit of gamma-Fe (it changes to an alpha-Fe phase later) was suppressed at the rapid solidification process, and big and rough-ization of soft magnetism phases, such as an alpha-Fe phase in heat-of-crystallization down stream processing, is controlled further. Consequently, a detailed R2Fe14B mold compound phase can produce the quenching alloy distributed to homogeneity.

[0058] According to this invention, using a raw material alloy with comparatively few (less than [10at%]) amounts of rare earth elements, magnetization (residual magnetic flux density) and coercive force are high, and the permanent magnet excellent also in the square shape nature of a demagnetization curve can be manufactured on mass-production level.

[0059] The increment in the coercive force by this invention is realized by having controlled big and rough-ization of a soft magnetism phase, depositing and growing up Nd₂Fe₁₄B phase preferentially at a cooling process, and making the rate of a volume ratio of Nd₂Fe₁₄B phase increase by it. the boron to which the increment in magnetization exists in a rapid solidification alloy by work of Ti -- boride phases, such as ferromagnetic iron machine boride, are generated from a rich nonmagnetic amorphous phase, and it is thought that it was obtained since the rate of a volume ratio of the nonmagnetic amorphous phase which remains after heat-of-crystallization processing was decreased.

[0060] Hereafter, the iron machine rare earth alloy magnet of this invention is explained more to a detail.

[0061] First, an empirical formula prepares the molten metal of the iron machine rare earth raw material alloy expressed by 100(Fe_{1-m}Tm)-x-y-z-n(B_{1-p}Cp) xRyTizMn. One or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel here, one or more sorts of elements chosen from the group which R becomes from Y (yttrium) and a rare earth metal, and M are one or more sorts of elements chosen from the group which consists of aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, and Pb. Moreover, the presentation ratio (rate of an atomic ratio) x, and y, z, m, n and p satisfy the following relational expression, respectively.

[0062] $10 < x \leq 25 \text{ atom } \%$, $7 \leq y < 10 \text{ atom } \%$, $0.5 \leq z \leq 12 \text{ atom } \%$, $0 \leq m \leq 0.50$, $0 \leq n \leq 10 \text{ atom } \%$ and $0 \leq p \leq 0.25$ [0063] Next, the cooling process which produces the quenching alloy which quenches the above-mentioned alloy molten metal in a reduced pressure controlled atmosphere, and contains a detailed (mean particle diameter is 150nm or less) R₂Fe₁₄B mold compound phase 60% or more at the rate of a volume ratio by the strip cast method is performed.

[0064] Then, if needed, heat-of-crystallization processing to a quenching alloy is performed, and the nano composite organization containing an R₂Fe₁₄B mold compound phase and a ferromagnetic iron machine boride phase is formed. As a soft magnetism phase, the detailed alpha-Fe phase may be included besides iron machine boride. During such an organization, the cooling conditions and heat-of-crystallization processing conditions of an alloy molten metal are adjusted so that the diameter of average crystal grain of 200nm or less and the boride phase of 20nm or more, and an alpha-Fe phase may be set to 1nm or more 50nm or less by the diameter of average crystal grain of an R₂Fe₁₄B mold compound phase.

[0065] According to this invention, many R₂Fe₁₄B mold compound phases are preferentially generable at the cooling process of an alloy molten metal with work of added Ti.

[0066] The diameter of average crystal grain of the R₂Fe₁₄B mold compound phase in a final magnet is larger than the diameter of average crystal grain of an iron machine boride phase or an alpha-Fe phase. The average size of the R₂Fe₁₄B mold compound phase which is a hard magnetism phase is comparatively large, and since each configuration phase joins together effectively by the exchange interaction and the magnetization direction of a soft magnetism phase is restrained by the hard magnetism phase when the average size of soft magnetism phases, such as an alpha-Fe phase, is small enough, it becomes possible to show the square shape nature of the demagnetization curve which was excellent as the whole alloy.

[0067] In this invention, it becomes possible by adjusting manufacture conditions, such as an alloy presentation, a cooling rate of an alloy, and heat treatment temperature, to generate the iron machine boride which has the saturation magnetization of an R₂Fe₁₄B mold compound phase, an EQC, or saturation magnetization higher than it, and alpha-Fe. The iron machine borides generated are for example, Fe₃B (saturation magnetization 1.5T) and Fe₂₃B₆ (saturation

magnetization 1.6T). The saturation magnetization of R₂Fe₁₄B is about 1.6T here, when R is Nd, and the saturation magnetization of alpha-Fe is 2.1T.

[0068] It is thought that it is for combining with the element of the others [boron / this / excessive] in heat-of-crystallization processing since the amorphous phase which exists in a quenching alloy if the coagulation alloy whose R₂Fe₁₄B mold compound phase , as for the reason the ferromagnetic above iron machine boride is easy to be generated when based on the manufacture approach of this invention , occupies most is produced will surely contain boron superfluously , and depositing and becoming easy to grow up . However, if the boron contained in the amorphous phase before heat treatment and other elements join together and the low compound of magnetization is generated, magnetization will fall as the whole magnet. In addition, not only the phase constituted by only the part in which atomic arrangement carried out disordering to the "amorphous phase" in this specification completely but the phase which contains partially the precursor, the microcrystal (size: several nm or less), or the atomic cluster of crystallization shall be included. Specifically, the phase which can identify the crystal structure clearly neither by the X diffraction nor transmission electron microscope observation will be widely called an "amorphous phase." And suppose that the structure where the crystal structure can be clearly identified by the X diffraction or transmission electron microscope observation is called a "crystal phase."

[0069] According to the experiment of this invention person, only when Ti was added, it turned out that unlike the case where the metal of other classes, such as V, Cr, Mn, Nb, and Mo, is added the fall of magnetization does not arise but magnetization improves rather. Moreover, when Ti was added, compared with other above-mentioned alloying elements, the square shape nature of a demagnetization curve became good especially. When controlling generation of the low boride of magnetization from these things, Ti is considered to carry out important work especially. Especially when there are little boron and Ti among the presentation range of the raw material alloy used by this invention in comparison, the iron machine boride phase which has ferromagnetism by heat treatment tends to deposit. In this case, since the rate of a volume ratio of a nonmagnetic amorphous phase which remains after heat-of-crystallization processing decreases as a result of incorporating the boron contained in a nonmagnetic amorphous phase in iron machine boride, and a ferromagnetic crystal phase increases, a residual magnetic flux density Br improves.

[0070] Moreover, when Ti is added, grain growth of alpha-Fe is controlled and the outstanding hard magnetic property is demonstrated. And ferromagnetic phases other than R₂Fe₁₄ B phase or an alpha-Fe phase are generated, and it becomes possible to form the organization containing three or more kinds of ferromagnetic phases in an alloy by it. When it replaces with Ti and metallic elements, such as Nb, V, and Cr, are added, as a result of grain growth of an alpha-Fe phase advancing remarkably in a comparatively high temperature field in which an alpha-Fe phase deposits and the magnetization direction of an alpha-Fe phase no longer being effectively restrained by switched connection with a hard magnetism phase, the square shape nature of a demagnetization curve falls greatly.

[0071] In addition, if it heat-treats in the comparatively low temperature field in which alpha-Fe does not deposit when it replaces with Ti and Nb, Mo, and W are added, it is possible to obtain the good hard magnetic property excellent in the square shape nature of a demagnetization curve. However, with the alloy which heat-treated at such temperature, it is presumed that the R₂Fe₁₄B mold fine crystal phase distributes and exists in a nonmagnetic amorphous phase, and the configuration of a nano composite magnet is not formed. Furthermore, if it heat-treats at high

temperature, an alpha-Fe phase will deposit out of an amorphous phase. Unlike the case where Ti is added, after a deposit, this alpha-Fe phase grows rapidly and is made big and rough. For this reason, the magnetization direction of an alpha-Fe phase will no longer be effectively restrained by switched connection with a hard magnetism phase, and the square shape nature of a demagnetization curve will deteriorate greatly.

[0072] Since these addition metals dissolve to Fe and join together in antiferromagnetism on the other hand when it replaces with Ti and V and Cr are added, magnetization will fall greatly.

[0073] On the other hand, when Ti is added, in order that the kinetics (kinetics) of a deposit and growth of an alpha-Fe phase may become late and a deposit and growth may take time amount to it, before a deposit and growth of an alpha-Fe phase are completed, it is thought that a deposit and growth of Nd₂Fe₁₄B phase begin. For this reason, before an alpha-Fe phase makes it big and rough, Nd₂Fe₁₄B phase grows greatly in the condition of having distributed to homogeneity.

[0074] Thus, only when Ti is added, big and rough-ization of an alpha-Fe phase is controlled appropriately, and it becomes possible to form ferromagnetic iron machine boride. Furthermore, in order for Ti to delay crystallization of Fe primary phase (gamma-Fe which metamorphoses into alpha-Fe behind) at the time of liquid quenching, to consider as the element which makes generation of a supercooled liquid easy and to carry out important work with boron and carbon, Even if it makes the cooling rate at the time of quenching an alloy molten metal into the comparatively low value of 102 degrees C/second - about 104 degrees C/second It becomes possible to produce the quenching alloy (for iron machine boride to be included in addition to an R₂Fe₁₄B mold crystal phase) which contains an R₂Fe₁₄B mold crystal phase more than 60 volume %, without depositing big and rough alpha-Fe.

[0075] In this invention, the strip cast method for filling up to a cooling roller with a molten metal from a chute (guidance means) directly, without performing control of flow of the molten metal by the nozzle orifice is used. For this reason, as compared with the case where it is based on the melt spinning process using a nozzle orifice, productivity is high and a manufacturing cost is low. Thus, in order to make amorphous the molten metal of a R-Fe-B system rare earth alloy in the cooling rate range which can be attained also by the strip cast method, it is usually necessary to add B (boron) more than 10 atom %. Thus, when many B is added, even after performing heat-of-crystallization processing to a quenching alloy, a nonmagnetic amorphous phase with high B concentration remains all over a metal texture, and a homogeneous fine crystal organization is not obtained. Consequently, the rate of a volume ratio of a ferromagnetic phase falls, and the fall of magnetization is invited. However, if Ti is added like this invention, since the phenomenon mentioned above will be observed, the high iron machine boride of magnetization is generated and magnetization improves unexpectedly.

[0076] If the presentation ratio x of the sum total of [reason for limitation of presentation] B and C becomes below 10 atom %, it becomes difficult to produce the quenching alloy with which an R₂Fe₁₄B mold crystal phase and an amorphous phase are intermingled, and when the cooling rate at the time of quenching is comparatively slow in 102 degrees C/second - about 105 degrees C/[a second and], even if it heat-treats after that, high coercive force will not be acquired. Moreover, if the presentation ratio x becomes below 10 atom %, the iron machine boride in which high magnetization is shown will no longer be generated. Its weatherability improves, so that there is much iron machine boride, in order that it may combine with Ti and the boron in iron machine boride may make a stable compound. For this reason, x needs to exceed 10 atom %. On the other hand, if the presentation ratio x exceeds 25 atom %, since the rate of an

abundance ratio of alpha-Fe which has the highest saturation magnetization in a configuration phase to the increase of the rate of the volume ratio of the amorphous phase in which after heat-of-crystallization processing remains, and coincidence will decrease, a residual magnetic flux density B_r will fall. It is desirable to set up so that the presentation ratio x may exceed 10 atom % and it may consist of the above thing below 25 atom %. The range of the more desirable presentation ratio x exceeds 10 atom %, and is below 17 atom %.

[0077] The ratio p of B and whole C C is an atomic ratio, and it is desirable that it is in or more 0.25 or less range. In order to acquire the effectiveness of C addition, it is desirable that the ratio p of C is 0.01 or more. If there is too less p than 0.01, the effectiveness of C addition will hardly be acquired. On the other hand, if p becomes larger than 0.25 too much, the amount of generation of an alpha-Fe phase will increase, and the problem that magnetic properties deteriorate will arise. As for the minimum of a ratio p , it is desirable that it is 0.02, and, as for the upper limit of p , it is desirable that it is 0.20 or less. As for a ratio p , it is still more desirable that it is [or more 0.08] 0.15 or less.

[0078] R is one or more sorts of elements chosen from the group of rare earth elements (Y is included). If La or Ce exists, since R (typically Nd) of $R_2Fe_{14}B$ phase will be permuted by La or Ce and coercive force and square shape nature will deteriorate, it is desirable that La and Ce are not included substantially. However, when La and Ce (below 0.5 atom %) of a minute amount exist as an impurity mixed unescapable, it is satisfactory on magnetic properties. Therefore, when it contains La and Ce below 0.5 atom %, it can be said that neither La nor Ce is included substantially.

[0079] As for R, it is desirable that Pr or Nd is included as an essential element, and, more specifically, it may permute a part of the essential element by Dy and/or Tb. When the presentation ratio y of R becomes under the whole 6 atom %, the compound phase which has the $R_2Fe_{14}B$ mold crystal structure required for the manifestation of coercive force does not fully deposit, but it becomes impossible to acquire the high coercive force H_cJ . Moreover, if the presentation ratio y of R becomes more than 10 atom %, since the abundance of the iron machine boride which has ferromagnetism will fall and the abundance of B Rich's non-magnetic layer will increase instead, nano composite structure is not formed but magnetization falls. Therefore, as for the presentation ratio y of rare earth elements R, it is desirable to adjust the more than range under of 10 atom %, for example, 6 atom %, below to 9.5 atom % more than 6 atom %. The range of more desirable R is below 9.3 atom % more than 7 atom %, and the range of most desirable R is below 9.0 atom % more than 8.3 atom %.

[0080] Addition of Ti contributes to the improvement of the improvement in coercive force H_cJ and a residual magnetic flux density B_r , and the square shape nature of a demagnetization curve, and raises maximum energy product $(BH)_{max}$ while it demonstrates the effectiveness of depositing and growing up a hard magnetism phase earlier than a soft magnetism phase, during quenching of an alloy molten metal.

[0081] If the presentation ratio z of Ti becomes under the whole 0.5 atom %, the effectiveness of Ti addition will not fully be discovered. On the other hand, if the presentation ratio z of Ti exceeds the whole 12 atom %, since the rate of a volume ratio of the amorphous phase in which after heat-of-crystallization processing remains will increase, it is easy to invite the fall of a residual magnetic flux density B_r . As for the presentation ratio z of the above thing to Ti, it is desirable to consider as the range below 12 atom % more than 0.5 atom %. The minimum of the range of more desirable z is 1.0 atoms %, and the upper limit of the range of more desirable z is six atoms %. Furthermore, the upper limit of the range of desirable z is pentatomic %.

[0082] Moreover, since the amorphous phase which contains Q (for example, boron) superfluously is easy to be formed so that the presentation ratio x of Q which consists of C and/or B is high, it is desirable to make the presentation ratio z of Ti high. The compatibility of Ti over B is strong and it is condensed by the grain boundary of a hard magnetism phase. If the ratio of Ti to B is too high, Ti is not in a grain boundary, may enter into an R₂Fe₁₄B compound, and may reduce magnetization. Moreover, if the ratio of Ti to B is too low, many B rich amorphous phases of magnetism-ed will be generated. According to the experiment, it is desirable to adjust a presentation ratio so that $0.05 \leq z/x \leq 0.4$ may be satisfied, and it is more desirable to satisfy $0.1 \leq z/x \leq 0.35$. Furthermore, it is $0.13 \leq z/x \leq 0.3$ preferably.

[0083] In order to acquire various effectiveness, a metallic element M may be added. M is one or more sorts of elements chosen from the group which consists of aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag.

[0084] Although Fe occupies the content remainder of an above-mentioned element, even if it permutes a part of Fe by one sort or two sorts of transition-metals elements (T), Co and nickel, it can obtain desired hard magnetic property. If the amount of permutations of T to Fe exceeds 50%, the high residual magnetic flux density Br beyond 0.7T will not be obtained. For this reason, as for the amount of permutations, it is desirable to limit to 50% or less of range 0% or more. In addition, since the Curie temperature of R₂Fe₁₄B phase rises while the square shape nature of a demagnetization curve improves by permuting a part of Fe by Co, thermal resistance improves. The range where the amount of Fe permutations by Co is desirable is 40% or less 0.5% or more.

[0085] Next, the desirable operation gestalt of this invention is explained to a detail, referring to a drawing.

[0086] (Operation gestalt 1) The 1st operation gestalt of this invention is explained first.

[0087] With this operation gestalt, a rapid solidification alloy is manufactured using the strip casting equipment shown in drawing 1. In order to prevent oxidation of the raw material alloy containing the rare earth elements R and Fe which are easy to oxidize, production of a quenching alloy is performed in an inert gas ambient atmosphere. As inert gas, rare gas and nitrogen, such as helium or an argon, can be used. In addition, as for nitrogen, it is desirable to use rare gas, such as helium or an argon, in order to tend to react in comparison with rare earth elements R.

[0088] The strip casting equipment of drawing 1 is arranged in the chamber which is not illustrated [which can change the interior into the reduced pressure condition in an inert gas ambient atmosphere]. This strip casting equipment was solidified with ** 4 which leads a molten metal 3 to a cooling roller 7, and chute (guidance means) 5 from the fusion furnace 1 for dissolving an alloy raw material, the cooling roller 7 for making the alloy molten metal 3 supplied from the pars-basilaris-ossis-occipitalis outlet 2 of a fusion furnace 1 quench and solidify, and the fusion furnace 1, and is equipped with the SUKURE par blow-of-gas machine 9 which make it easy to exfoliate the thin band-like alloy 8 from a cooling roller 7.

[0089] A fusion furnace 1 can supply the molten metal 3 produced by fusing an alloy raw material by the amount of supply of abbreviation regularity to chute 5. This amount of supply can be adjusted to arbitration by controlling the actuation which leans a fusion furnace 1 etc. In addition, ** 4 may supply the alloy molten metal 3 which came out from the fusion furnace 1 to the direct chute 5 rather than is indispensable.

[0090] The peripheral face is formed from the copper thermally conductive good ingredient, for example, a cooling roller 7 has the dimension whose width of face is 15cm - 100cm for the diameter of 30cm - 100cm. A cooling roller 7 can be rotated with a predetermined rotational

speed with a non-illustrated driving gear. By controlling this rotational speed, the peripheral velocity of a cooling roller 7 can be adjusted to arbitration. The cooling rate by this strip casting equipment is controllable by choosing the rotational speed of a cooling roller 7 etc. in about 102 degrees C/second - about 105 degrees C [/second] range.

[0091] The field to which it shows the molten metal of chute 5 receives horizontally, and inclines at an include angle (whenever [tilt-angle]) α , and the distance of the point of chute 5 and the front face of a cooling roller is kept at several mm or less. And chute 5 is arranged so that the line which connects the point and core of a cooling roller 7 may receive horizontally and may form an include angle β ($0 \text{ degree} \leq \beta \leq 90 \text{ degrees}$). As for α , it is desirable that it is $1 \text{ degree} \leq \alpha \leq 80 \text{ degrees}$, and it is [whenever / tilt-angle / of chute 5] still more desirable to satisfy the relation it is [relation] $5 \text{ degrees} \leq \alpha \leq 60 \text{ degrees}$. As for an include angle β , it is desirable to satisfy the relation of $10 \text{ degrees} \leq \beta \leq 55 \text{ degrees}$.

[0092] The molten metal 3 supplied on the chute 5 is supplied from the point of chute 5 to the front face of a cooling roller 7, and forms the paddle 6 of a molten metal in the front face of a cooling roller 7.

[0093] As chute 5 can carry out hot water storing of the molten metal 3 supplied continuously temporarily by the predetermined flow rate from a fusion furnace 1, it can be delayed in the rate of flow, and it can rectify the flow of a molten metal 3. If the **** check plate to which flow of the molten metal surface section in the molten metal 3 supplied to the chute 5 is alternatively made as for **** stop ***** is formed, the rectification effectiveness can be raised further. using chute 5 -- the direction of drum length of a cooling roller 7 (the direction of an axis: perpendicular to space) -- setting -- constant width -- crossing -- abbreviation -- a molten metal 3 can be supplied in the condition of having extended in uniform thickness. By adjusting α whenever [tilt-angle / of the molten metal slideway of chute 5], a molten metal speed of supply can be tuned finely. With the self-weight, a molten metal flows the slideway toward which the chute 5 inclined, and has a momentum component parallel horizontally (X shaft orientations). The rate of flow of a molten metal becomes quick, and momentum also becomes large, so that α is enlarged whenever [tilt-angle / of chute 5].

[0094] In addition to the above-mentioned function, chute 5 also has the function to adjust the temperature of the molten metal 3 just before reaching a cooling roller 7. As for the temperature of the molten metal 3 on chute 5, it is desirable that it is temperature higher 100 degrees C or more than liquidus-line temperature. It is because primary phases, such as TiB₂ which has a bad influence on the alloy property after quenching, may carry out karyogenesis locally, and they may remain after this solidifying when the temperature of a molten metal 3 is too low. Moreover, if molten metal temperature is too low, molten metal viscosity will rise and it will become easy to generate a splash. Although the molten metal temperature on chute 5 is controllable by adjusting the molten metal temperature in the time of pouring into chute 5 from a fusion furnace 1, the heat capacity of chute 5 the very thing, etc., it may form chute heating apparatus (it sets to drawing 1 and is un-illustrating) if needed.

[0095] The chute 5 in this operation gestalt has two or more discharge sections in which only predetermined spacing was detached and prepared along the direction of an axis of a cooling roller in the edge arranged so that the peripheral face of a cooling roller 7 may be countered. The width of face (width of face of one flow of a molten metal) of this discharge section is set as 0.5cm - 10.0cm, and is more suitably set as 0.7cm - 4.0cm. With this operation gestalt, the width of face of each molten metal flow in the discharge section is set as 1cm. In addition, the width of face of the flow of a molten metal tends to spread in a longitudinal direction as it separates from

the location of the above-mentioned discharge section. When preparing two or more discharge sections in chute 5 and forming two or more molten metal flow, it is desirable to make it the adjoining molten metal flow not contact mutually.

[0096] Along the direction of an axis of a cooling roller 7, the molten metal 3 supplied on the chute 5 has the width of face and abbreviation same width of face of each discharge section, and contacts a cooling roller 7. Then, the molten metal 3 which contacted by predetermined tapping width of face moves a roll (enabling it to pull up to cooling roller 7) peripheral surface top to a cooling roller 7 with rotation of a cooling roller 7, and it is cooled in this migration process. In addition, in order to prevent molten metal leakage, as for the distance between the point of chute 5, and a cooling roller 7, it is desirable to be set as 3mm or less (especially the range of 0.4-0.7mm).

[0097] The gap between the adjoining discharge sections is suitably set as 1cm - 10cm. Thus, if the molten metal contact section (molten metal cooling section) in the peripheral face of a cooling roller 7 is divided into two or more parts, the molten metal discharged from each discharge section can be cooled effectively. As a result, also when the molten metal amount of supply to chute 5 is made to increase, a desired cooling rate can be realized.

[0098] In addition, the gestalt of chute 5 is not restricted to the above-mentioned gestalt, but you may have the single discharge section, and tapping width of face may be set up more greatly.

[0099] The alloy molten metal 3 solidified on the peripheral face of the rotating cooling roller 7 serves as the thin band-like coagulation alloy 8, and exfoliates from a cooling roller 7. In the case of this operation gestalt, the molten metal which flowed out of each of two or more discharge sections serves as a band of predetermined width of face, and solidifies. The exfoliative coagulation alloys 8 are crushed and collected in a non-illustrated recovery system.

[0100] Thus, since the strip cast method does not have problems, such as constraint of the injection speed by the diameter of a nozzle, and molten metal plugging by the coagulation in the nozzle section, not using a nozzle like a melt spinning process, it is suitable for mass production method. Moreover, since the pressure controlling mechanism for controlling a heating facility of the nozzle section and molten metal head ** is not required, either, initial plant-and-equipment investment and a running cost can be held down small.

[0101] Moreover, in the melt spinning process, since reuse of a nozzle part was impossible, the high nozzle of processing cost had to be made throwing away, but since it is possible to repeat and use a chute by the strip cast method, a running cost is cheap.

[0102] Furthermore, since according to the strip cast method a cooling roller is rotated at a late rate and the amount of alloy tapping can be made [many] compared with a melt spinning process, a quenching alloy thin band can be thickened.

[0103] However, by the strip cast method, in order not to inject an alloy molten metal strongly on the surface of a cooling roller, when a cooling roller 7 rotates with a comparatively quick peripheral velocity of 10m/second or more, there is a problem that it is difficult to stabilize and form the paddle 6 of a molten metal in the front face of a cooling roller 7. Moreover, since the pressure on which an alloy molten metal pushes a roll surface is small when not using a nozzle, in the contact section of an alloy molten metal and a roll surface, it is easy to produce a minute clearance between an alloy molten metal and a roll surface. For this reason, the adhesion between an alloy molten metal and a roll surface is inferior in the strip cast method compared with a melt spinning process. About the problem about adhesion, and its solution approach, it mentions later.

[0104] With this operation gestalt, the speed of supply per unit contact width of face between a

molten metal and a cooling roller has prescribed the upper limit of a molten metal speed of supply (throughput). When based on the strip cast method, the cooling conditions of a molten metal depend for a molten metal on the molten metal speed of supply per unit contact width of face greatly in order to contact a cooling roller so that it may have predetermined contact width of face along the direction of an axis of a cooling roller.

[0105] If a molten metal speed of supply is too quick, it will become impossible to obtain the raw material alloy which the quenching alloy which includes many crystallization organizations, without the cooling rate of the molten metal by the cooling roller falling, consequently amorphous-ization promoting will be produced, and fitted the nano composite magnet. for this reason -- this invention -- unit contact width of face -- (-- the speed of supply (a part for kg/) of per cm) is set below to /cm by 3kg/.

[0106] Moreover, as mentioned above, when contacting a molten metal to a cooling roller with contact **** 2cmx3 contact gestalt, the above throughput can be realized by about 3kg/by setting up a speed of supply by about 0.5kg/more than /cm.

[0107] thus, the quenching alloy of a request also when the strip cast method is used by supplying a molten metal with the speed of supply of the above-mentioned specific range to the cooling roller which rotates with the peripheral velocity of the above-mentioned specific range -- productivity -- it is highly producible. By the strip cast method, since the nozzle to which a manufacturing cost is made to increase remarkably like the jet cast method is not used, the cost concerning a nozzle becomes unnecessary and production does not stop according to the lock out accident of a nozzle.

[0108] In this operation gestalt, the peripheral velocity of a cooling roller can be set [second] up a second in 5m /or more less than 20m /. If the quenching alloy of the request by roll peripheral velocity being less than 5m/second with lack of refrigeration capacity is not obtained and it carries out [second] in 20m /or more, since it will become difficult to pull up a molten metal and a cooling alloy will disperse in a thin film integrated circuit with a roll, there is a possibility of causing difficulty also in recovery. Although the optimal peripheral velocity may change with the structure of a cooling roller, the quality of the material, molten metal speeds of supply, etc., if peripheral velocity is quick, since the thin band-like alloy obtained becomes extremely thin and is bulky, it will be hard coming to deal with it. Moreover, if peripheral velocity is too quick, since the configuration of the magnetic powder which ground and produced the thin band-like alloy will become flat, in case magnetic powder is fabricated, the fluidity of magnetic powder and a cavity filling factor fall. Consequently, a magnetic magnetic powder consistency will fall and a magnet property will deteriorate. On the other hand, if peripheral velocity is slow, it will become difficult to obtain sufficient cooling rate. From these things, the peripheral velocity of a cooling roller is preferably set [second] up a second in 5m /or more 20m /or less, and is more preferably set [second] up a second in 6m /or more 15m /or less. The still more desirable range of the peripheral velocity of a cooling roller is 10m/second or more 13m/second or less.

[0109] In addition, if the speed of supply per unit contact width of face exceeds /cm by 3kg/, a predetermined cooling rate will not be obtained but it will become difficult to produce a desired quenching alloy. Although the range where the speed of supply per unit contact width of face is suitable may differ according to roll peripheral velocity, roll structure, etc., it is desirable that it is [2kg] below /cm by /, and it is still more desirable that it is [1.5kg] below /cm by /.

[0110] Moreover, by 3kg/, by the following, the molten metal speed of supply (processing speed) as the whole equipment has bad productivity, and since it cannot realize cheap feeding, it is carried out above by 3kg/. For that, when a chute, the configuration of a cooling roller, etc. are

chosen appropriately, it is desirable to carry out the speed of supply per unit contact width of face by 0.4kg/more than /cm.

[0111] If roll peripheral velocity is 5m/second - 10m/second when the roll made from Cu of 15cm of **** is used for the diameter of about 35cm, the speed of supply per unit contact width of face has a /cm grade desirable [for example,] by /cm - 2kg/by 0.5kg/. In this case, a quenching process can be performed with 0.5kg a part for /-, and 6kg speed of supply for /.

[0112] The thickness (average) and width of face of a thin band-like quenching alloy which are obtained can adjust within proper limits by choosing appropriately the width of face of the molten metal discharge section, a number, a molten metal speed of supply, etc. [the configuration of chute 5,] As for the width of face of a thin band-like quenching alloy, it is desirable that it is the range of 15mm - 80mm. Moreover, since bulk density will become low if too thin, collecting becomes difficult, the roll contact surface of a molten metal differs in a cooling rate from a free surface (molten metal front face) when too thick and the cooling rate of a free surface is not fully obtained, the thickness of a thin band-like alloy is not desirable. For this reason, it is desirable to make it the thickness of a thin band-like alloy set to 50 micrometers or more 250 micrometers or less, and 60-micrometer or more thing it is made to be set to 200 micrometers or less is more desirable. The still more desirable range of the thickness of a quenching alloy is 70 micrometers or more 90 micrometers or less. Moreover, when the pack density of a bond magnet is taken into consideration, as for the thickness of a quenching alloy, it is desirable to exceed 80 micrometers.

[0113] With [heat treatment] book operation gestalt, heat treatment is performed in argon atmosphere. Preferably, a programming rate is carried out in 5 degrees C/second - 20 degrees C/second, and at 550-degree-C or more temperature of 850 degrees C or less, 30 seconds or more, after [20 or less minutes] carrying out time amount maintenance, it cools to a room temperature. Of this heat treatment, into a residual amorphous phase, the fine crystal of a metastable phase deposits and grows and nano composite organization is formed. According to this invention, since the detailed R2Fe14B crystal phase (Nd2Fe14B mold crystal phase) has already existed more than the whole 60 volume % at the time (as-cast) before initiation of heat treatment, big and rough-ization of an alpha-Fe phase or other crystal phases is controlled, and each configuration phase other than a Nd2Fe14B mold crystal phase (soft magnetism phase) is made detailed by homogeneity. The rate of a volume ratio which the R2Fe14B crystal phase after heat treatment (Nd2Fe14B mold crystal phase) occupies in an alloy is 65 - 85%.

[0114] In addition, if heat treatment temperature is less than 550 degrees C, many amorphous phases may remain and after heat treatment may not reach level with sufficient coercive force depending on quenching conditions. Moreover, if heat treatment temperature exceeds 850 degrees C, grain growth of each configuration phase will be remarkable, a residual magnetic flux density Br will fall, and the square shape nature of a demagnetization curve will deteriorate. For this reason, although 550 degrees C or more 850 degrees C or less of heat treatment temperature are desirable, the range of more desirable heat treatment temperature is 570 degrees C or more 820 degrees C or less.

[0115] In this invention, it deposits uniformly [the Nd2Fe14B mold compound phase of amount sufficient in a quenching alloy], and minutely. For this reason, even when not daring perform heat-of-crystallization processing to a quenching alloy, the rapid solidification alloy itself can demonstrate sufficient magnet property. Therefore, although heat-of-crystallization processing is not a process indispensable to this invention, in order for it to be improvement in a magnet property to perform this, it is desirable. In addition, it is possible for heat treatment of low

temperature to also fully raise a magnet property as compared with the former.

[0116] A heat treatment ambient atmosphere has desirable inert gas, such as Ar gas of 50 or less kPa, and N₂ gas, in order to prevent oxidation of an alloy. 0. You may heat-treat in the vacuum of 1 or less kPa.

[0117] In the quenching alloy before heat treatment, metastable phases, such as Fe₃ B phase, Fe₂₃ B₆, R₂Fe₁₄ B phase, and an R₂Fe₂₃B three phase circuit, may be contained in addition to the R₂Fe₁₄B compound phase and the amorphous phase. In that case, by heat treatment, an R₂Fe₂₃B three phase circuit can disappear, and can carry out crystal growth of the iron machine boride (for example, Fe₂₃ B₆) and alpha-Fe which show the saturation magnetization of R₂Fe₁₄ B phase, equivalent, or saturation magnetization higher than it. In addition, "Fe₃ B phase" in this specification shall contain "Fe_{3.5} B phase."

[0118] In order that a soft magnetism phase and a hard magnetism phase may join together magnetically by the exchange interaction since the diameter of average crystal grain of a soft magnetism phase is smaller than the diameter of average crystal grain of a hard magnetism phase even if a soft magnetism phase like alpha-Fe finally exists in the case of this invention, outstanding magnetic properties are demonstrated.

[0119] The diameter of average crystal grain of the Nd₂Fe₁₄B mold compound phase after heat treatment needs to be set to 300nm or less which is uniaxial crystal particle size, it is desirable that it is [20nm or more] 200nm or less, and it is still more desirable that it is [20nm or more] 150nm or less. On the other hand, if the diameter of average crystal grain of a ferromagnetic iron machine boride phase or an alpha-Fe phase exceeds 50nm, since the exchange interaction committed to each configuration interphase will become weaker and the square shape nature of a demagnetization curve will deteriorate, (BH) max will fall. Usually, these phases do not serve as a sludge with a small diameter, but serve as a sludge with a magnitude of several nm from 1nm. As for the diameter of average crystal grain of soft magnetism phases, such as a boride phase from the above thing, and an alpha-Fe phase, it is desirable that it is [1nm or more] 50nm or less, and it is still more desirable that it is [5nm or more] 30nm or less. It is still more desirable on magnetic properties that the diameter of average crystal grain of a Nd₂Fe₁₄B mold compound phase is [the diameter of average crystal grain of 20nm or more 100nm or less and a soft magnetism phase] 1nm or more 30nm or less. Moreover, in order to excel as an exchange spring magnet and to demonstrate the engine performance, as for the diameter of average crystal grain of a Nd₂Fe₁₄B mold compound phase, it is desirable that it is larger than the diameter of average crystal grain of a soft magnetism phase.

[0120] Moreover, according to this operation gestalt, as shown in drawing 2, the organization to which the detailed iron machine boride phase (Fe, Ti) (-B compound) existed in the grain boundary or subgrain boundary of a Nd₂Fe₁₄B mold compound phase is obtained. Such an organization is suitable for maximizing the exchange interaction of a configuration interphase. Ti exists in iron machine boride. This is considered to be because for the compatibility over B of Ti to be strong and for Ti to be easy to be condensed in iron machine boride. In order that Ti and B may join together strongly within iron machine boride, it is thought that addition of Ti stabilizes iron machine boride.

[0121] In addition, the thin band of a quenching alloy may be coarsely cut or ground before heat treatment. If the obtained magnet is pulverized after heat treatment and magnet powder (magnetic powder) is produced, various bond magnets can be manufactured according to a well-known process from the magnetic powder. When producing a bond magnet, it is mixed with an epoxy resin or Nylon and iron machine rare earth alloy magnetic powder is fabricated by the

desired configuration. At this time, other magnetic powder, for example, Sm-Fe-N system magnetic powder, and hard ferrite magnetic powder of a class may be mixed to nano composite magnetic powder.

[0122] Various kinds of rotating machines, such as a motor and an actuator, can be manufactured using an above-mentioned bond magnet.

[0123] When using for injection-molding bond magnets the end of ***** it was obtained by the approach of this invention, it is desirable to grind so that average grain size may be set to 200 micrometers or less, and the mean particle diameter of more desirable powder is 30 micrometers or more 150 micrometers or less. Moreover, when using for compression-molding bond magnets, it is desirable to grind so that grain size may be set to 300 micrometers or less, and the mean particle diameter of more desirable powder is 30 micrometers or more 250 micrometers or less. Furthermore, the desirable range is 50 micrometers or more 200 micrometers or less.

[0124] (Operation gestalt 2) Next, the 2nd operation gestalt of this invention is explained.

[0125] When quenching and solidifying the molten metal of the alloy of the above-mentioned presentation which contains Ti as an essential element by the strip cast method, the compounds (TiB₂ etc.) which Ti and B combined become high compared with the molten metal of the iron machine rare earth magnet raw material alloy with which it is easy to be formed in a molten metal, consequently the liquidus-line temperature of a molten metal has the conventional presentation. If the liquidus-line temperature of a molten metal becomes high, it will set up for raising the part and molten metal temperature (it being an about [100 degree C] elevated temperature from liquidus-line temperature) and molten metal viscosity will not be maintained low enough, it becomes impossible to realize stable tapping.

[0126] However, since roll skin temperature will rise if tapping temperature is made high when making an alloy molten metal quench and solidify on the surface of a cooling roller, the thin band of a quenching alloy stops being able to separate from a cooling roller easily, and becomes easy to coil around a cooling roller. If an alloy thin band coils around a roll, a molten metal is supplied one after another on the alloy which coiled, and in order that the crystal phase generated in a quenching alloy may make it big and rough, a final magnet property will deteriorate.

[0127] This problem hardly produces a comparatively little alloy molten metal in the melt spinning process injected from a nozzle. When based on a melt spinning process, the adhesion between the molten metals and roll surfaces where the amount of the molten metal which contacts on the surface of a cooling roller is injected strongly few is also good. consequently, the capacity for a roll to cool a molten metal -- falling -- hard -- cooling of a molten metal -- homogeneity -- and it is because it fully goes on.

[0128] On the other hand, when based on the strip cast method, in order not to use a nozzle, it is difficult homogeneity and to fully cool a lot of alloy molten metals. Moreover, in the alloy presentation used by this invention, the cooling rate of a molten metal and the homogeneity of cooling will influence the detailed organization of a quenching alloy greatly, and will determine a magnet property. For this reason, in order to mass-produce a high performance nano composite magnet by the strip cast method, it is necessary to fully prevent coiling round of the alloy thin band to a cooling roller.

[0129] this invention person found out that the liquidus-line temperature of an alloy molten metal fell by 10 degrees C or more (for example, about 40-80 degrees C) by adding Nb of optimum dose to the alloy of a presentation system mentioned above. Though only the part reduced molten metal temperature when the liquidus-line temperature of an alloy molten metal fell, it becomes possible for molten metal viscosity to hardly increase but to perform stable tapping continuously.

While preventing coiling round by the roll since sufficient cooling can be attained on the surface of a cooling roller if tapping temperature becomes low, it becomes possible to make a rapid solidification alloy organization homogeneity detailed.

[0130] So, with this operation gestalt, an empirical formula quenches the molten metal of the alloy expressed by $100(\text{Fe}_{1-m}\text{Tm})\text{-x-y-z-n}(\text{B}_{1-p}\text{Cp})\text{ xRyTizNbn}$ by the strip cast method. Here, one or more sorts of elements chosen from the group which T becomes from Co and nickel, and R are expressed by one or more sorts of elements chosen from the group which consists of Y (yttrium) and a rare earth metal, and the presentation ratio x, and y, z, m, n and p satisfy the following relational expression, respectively.

[0131] $10 < x \leq 25 \text{ atom \%}$, $7 \leq y < 10 \text{ atom \%}$, $0.5 \leq z \leq 12 \text{ atom \%}$, $0 \leq m \leq 0.5$, $0.1 \leq n \leq \text{pentatomic \%}$ and $0 \leq p \leq 0.25$ [0132] In addition, in order to prevent coiling round of the alloy by the cooling roller, it is desirable it not only to add Nb, but to adjust ambient gas pressure in the suitable range as mentioned above.

[0133] With this operation gestalt, a rapid solidification alloy is manufactured using the strip casting equipment shown in drawing 3. In order to prevent oxidation of the raw material alloy containing the rare earth elements R and Fe which are easy to oxidize, an alloy production process is performed in an inert gas ambient atmosphere. As inert gas, rare gas and nitrogen, such as helium or an argon, can be used.

[0134] The strip casting equipment of drawing 3 is arranged in the chamber which can change the interior into a reduced pressure condition in an inert gas ambient atmosphere. This strip casting equipment was solidified like the equipment of drawing 1 with the chute (tundish) 5 which leads a molten metal 3 to a cooling roller 7 from the fusion furnace 1 for dissolving an alloy raw material, the cooling roller 7 for making the alloy molten metal 3 supplied from a fusion furnace 1 quench and solidify, and the fusion furnace 1, and is equipped with the SUKURE par blow-of-gas machine 9 which make it easy to exfoliate the thin band-like alloy 8 from a cooling roller 7.

[0135] A fusion furnace 1 can supply the molten metal 3 produced by fusing an alloy raw material by the amount of supply of abbreviation regularity to chute 5. This amount of supply can be adjusted to arbitration by controlling the actuation which leans a fusion furnace 1 etc.

[0136] The cooling roller 7 is formed from the ingredient with the peripheral face good [copper thermal conductivity], and a diameter (2r) has the dimension whose width of face is 15cm - 100cm by 30cm - 100cm. A cooling roller 7 can be rotated with a predetermined rotational speed with a non-illustrated driving gear. By controlling this rotational speed, the peripheral velocity of a cooling roller 7 can be adjusted to arbitration. The cooling rate by this strip casting equipment is controllable by choosing the rotational speed of a cooling roller 7 etc. in the about 102 degrees C/second - about 2×10^4 degrees C [/second] range.

[0137] The molten metal 3 supplied on the chute 5 is supplied without the ability applying a pressure from the point of a chute to the front face of a cooling roller 7, and the paddle 6 of a molten metal is formed in the front face of a cooling roller 7.

[0138] Chute 5 consists of ceramics etc., as it can carry out hot water storing of the molten metal 3 continuously supplied by the predetermined flow rate from a fusion furnace 1 temporarily, it can be delayed in the rate of flow, and it can rectify the flow of a molten metal 3. If the **** check plate to which flow of the molten metal surface section in the molten metal 3 supplied to the chute 5 is alternatively made as for **** stop ***** is formed, the rectification effectiveness can be raised further.

[0139] It is applied that the various conditions in a strip cast process explained the first operation

gestalt. Moreover, the process after carrying out to a quenching alloy is the same as the process in the 1st operation gestalt.

[0140] According to this operation gestalt, by adding Nb to an iron machine rare earth alloy with Ti, the liquidus-line temperature of an alloy molten metal is lowered, and it becomes possible to be stabilized and to manufacture a quenching alloy on mass-production level.

[0141] In addition, as for the presentation ratio of Nb, it is desirable that it is below pentatomic % more than 0.1 atom %, and it is still more desirable that it is below 3 atom % more than 0.5 atom %.

[0142] (Operation gestalt 3) Next, the 3rd operation gestalt of this invention is explained.

[0143] As mentioned above, with the alloy used by this invention, the compounds (TiB₂ etc.) which Ti and B combined become high compared with the molten metal of the iron machine rare earth magnet raw material alloy with which it is easy to be formed in a molten metal, consequently the liquidus-line temperature of a molten metal has the conventional presentation.

[0144] this invention person found out that the liquidus-line temperature of an alloy molten metal carried out 5-degree-C or more (for example, about 10-40 degrees C) fall, when adding C (carbon) of optimum dose into the iron machine alloy containing Ti and B. Since crystallization, such as TiB₂, will be controlled even if it reduces the part and molten metal temperature if the liquidus-line temperature of an alloy molten metal falls by carbonaceous addition, it becomes possible for molten metal viscosity to hardly increase but to form stable molten metal flow continuously. While preventing coiling round by the roll since sufficient cooling can be attained on the surface of a cooling roller if molten metal temperature becomes low, it becomes possible to make a rapid solidification alloy organization homogeneity detailed.

[0145] With this operation gestalt, an iron machine rare earth rapid solidification alloy is produced by quenching the alloy molten metal as which an empirical formula is expressed by $100(\text{Fe}1-\text{mTm})-\text{x}-\text{y}-\text{z}-\text{n}(\text{B}1-\text{pCp}) \text{xRyTizMn}$ by the strip cast method. T is one or more sorts of elements chosen from the group which consists of Co and nickel here, and R is one or more sorts of elements chosen from the group which consists of Y (yttrium) and a rare earth metal. M is one or more sorts of elements chosen from the group which consists of aluminum, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, and Pb.

[0146] x in the above-mentioned empirical formula, and y, z, m, n and p satisfy the following relational expression, respectively.

[0147] $10 < \text{x} \leq 25 \text{ atom \%}$, $7 \leq \text{y} < 10 \text{ atom \%}$, $0.5 \leq \text{z} \leq 12 \text{ atom \%}$, $0 \leq \text{m} \leq 0.50$, $0 \leq \text{n} \leq 10 \text{ atom \%}$ and $0.01 \leq \text{p} \leq 0.25$

[0148] In order to make the molten metal of the above-mentioned alloy solidify, also in this operation gestalt, the strip casting equipment shown in drawing 3 is used. In addition, with this operation gestalt, an oxygen density fuses a raw material 1000 ppm or less at the rate of a mass ratio, and controls the oxygen density of the alloy in a melting condition by the rate of a mass ratio to 3000 ppm or less. Since the oxygen density of a molten metal changes with the oxygen tension in an ambient atmosphere, the time amount from melting to rapid solidification, etc., he is trying for an oxygen density not to exceed 3000 ppm by adjusting these terms and conditions with this operation gestalt.

[0149] The molten metal 3 supplied on the chute 5 is supplied without the ability applying a pressure from the point of a chute to the front face of a cooling roller 7, and forms the paddle 6 of a molten metal in the front face of a cooling roller 7. With this operation gestalt, since the liquidus-line temperature of a molten metal is low maintained by adding carbon, when molten metal temperature is 1200 degrees C or more, the kinematic viscosity of a molten metal is maintained below at a $5 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{second}$, and smooth fluidity realizes it.

[0150] As for the temperature of the molten metal 3 on chute 5, it is desirable that it is temperature higher 100 degrees C or more than liquidus-line temperature. It is because the primary phase which has a bad influence on the alloy property after quenching may carry out karyogenesis locally, and it may remain after this solidifying when the temperature of a molten metal 3 is too low.

[0151] It is applied that the various conditions in a strip cast process explained the first operation gestalt. Moreover, the process after carrying out to a quenching alloy is the same as the process in the 1st operation gestalt.

[0152] In addition, since "bulk density" of the obtained quenching alloy thin band is below 0.5g (g)/cc in many cases, it is desirable after quenching to grind and collect alloys so that "bulk density" may become [cc] in 1g /or more using suitable grinding equipment.

[0153] The process after this strip cast process should just perform the process in the 1st operation gestalt, and the same process.

[0154] According to this operation gestalt, by adding C to an iron machine rare earth alloy with Ti, the liquidus-line temperature of an alloy molten metal is lowered, and it becomes possible to be stabilized and to manufacture a quenching alloy on mass-production level.

[0155] (Operation gestalt 4) The peripheral velocity of the cooling roller in the conventional strip cast method is very slow, and is about 1-2m/second. it is desirable for it to be markedly alike and to cool a molten metal with a quick peripheral velocity rather than the peripheral velocity in the conventional strip cast method by Ti addition, at the alloy presentation used by this invention, in order to raise a magnet property as much as possible although a good quenching alloy organization can be comparatively formed also with a low speed.

[0156] However, in the strip cast method, if the rotational speed of a cooling roller is raised, it will become difficult to fully pull up an alloy molten metal. In the case of the strip cast method, compared with a melt spinning process, the degree of adhesion of the molten metal to the roll surface to rotate is a low pile. It is a cause that the thin air space by which this is formed in a roll surface invades between a molten metal and a roll surface. For this reason, it is because a molten metal is slippery on a roll surface and it becomes impossible to pull up a molten metal, when a cooling roller is rotated at high speed. On the other hand, when based on a melt spinning process, in order to throw the thin jet of a molten metal which has a big momentum through a nozzle orifice at a cooling roller front face, even when an air space can be broken, a molten metal can be stuck to a roll surface and the cooling roller is carrying out high-speed rotation even if, it is possible to form a desired rapid solidification alloy.

[0157] From such a situation, when a cooling rate needed to be raised conventionally, it had set up for raising the peripheral velocity of a cooling roller using a melt spinning process (for example, 20m/(second) or more). Conversely, when a cooling rate could be slow, peripheral velocity of a cooling roller was set up low (for example, 1-2m/(second)) using the strip cast method.

[0158] When producing an iron machine rare earth alloy magnet with a melt quenching method, unless a cooling rate is fully raised, desired detailed organization cannot be obtained. Since a cooling rate became inadequate if not conventionally based on a melt spinning process when manufacturing the nano composite magnet which the hard magnetism phase and soft magnetism phases, such as α -Fe, which consist of a Nd-Fe-B system compound especially combined magnetically by the exchange interaction, a desired quenching organization was not obtained. Therefore, mass-producing such a nano composite magnet by the strip cast method was not realized.

[0159] this invention persons have considered development of the strip cast method using the cooling roller which rotates at high speed (peripheral velocity : 10m/(second) or more) in order to attain the cooling rate made difficult [implementation] according to the conventional strip cast method. By this invention persons' strip cast method, an alloy molten metal is supplied on the inclined chute (guidance means), using the self-weight of a molten metal, it is on a chute and the longitudinal direction flow of an alloy molten metal is formed. Thus, by giving a comparatively big momentum to a molten metal, it becomes possible to throw a molten metal at a cooling roller front face, and to stick a molten metal on the front face of the cooling roller which carries out high-speed rotation.

[0160] However, according to this invention persons' strip cast method of describing above, even if it added C and Nb and performed quenching of a molten metal under the reduced pressure ambient atmosphere, it turned out that a quenching alloy may coil around a cooling roller. When a quenching alloy coils around a cooling roller, a quenching process is obliged to interruption and it becomes impossible to continue a quenching process. This serves as big trouble for fertilization implementation.

[0161] With this operation gestalt, the paddle of a molten metal is stabilized and formed on the cooling roller which rotates at high speed, and the configuration and cooling roller of a chute useful although it moreover prevents that a quenching alloy coils around a roll are explained to a detail.

[0162] With this operation gestalt, the strip cast method is performed using the equipment shown in drawing 3. As mentioned above, the molten metal slideway of chute 5 receives horizontally, inclines, and forms the passage of the molten metal to a cooling roller 7. The include angle alpha between the slideway of chute 5 and a horizontal direction (whenever [tilt-angle]) is an important parameter in order to control the amount of supply (rate) of a molten metal delicately.

[0163] The molten metal 3 supplied on the chute 5 is supplied from the point of chute 5 with a horizontal momentum to the front face of a cooling roller 7, and forms the paddle 6 of a molten metal in the front face of a cooling roller 7.

[0164] Drawing 4 is the perspective view showing the top face of chute 5. This chute 5 has the guide to which it shows a point to the molten metal received by one place. Some of these guides exist not only in the both sides of passage but in a center section, and it can divide molten metal flow into two articles. In the example of drawing 4, each width of face of the molten metal flow of two articles is specified to 10mm, and the molten metal of a monograph is supplied to a cooling roller front face at intervals of 10mm. according to the chute 5 with such a guide -- the direction of drum length of a cooling roller 7 (the direction of an axis: direction perpendicular to the space of drawing 3) -- setting -- constant width -- crossing -- abbreviation -- a molten metal 3 can be supplied in the condition of having extended in uniform thickness. In addition, the width of face (width of face of a quenching alloy) of each ribbon at this time is set as 5-20mm. It is because it becomes difficult to perform the casting stabilized when mass-production nature fell when ribbon width of face was less than 5mm, and it exceeded 20mm.

[0165] Detailed irregularity usually exists in the front face of the cooling roller 7 used for strip cast equipment. When the surface roughness of a cooling roller 7 becomes large, the effectual touch area of an alloy molten metal and the front face of a cooling roller 7 will decrease for the detailed crevice which exists in a roll surface.

[0166] Drawing 5 shows typically the cross-section configuration of the molten metal in contact with the front face of the cooling roller 7 which rotates with the peripheral velocity of 10m/second. A controlled atmosphere is involved in between the front face of a cooling roller 7,

and the inferior surface of tongue of a molten metal, and many air pockets 50 are formed in it. The effectual touch area of a roll surface and a molten metal falls, so that the surface roughness of a cooling roller 7 is large. Consequently, the amount of cooling from the molten metal by the cooling roller 7 will fall, and the cooling rate of the alloy molten metal 3 will decrease substantially. Thus, a fall of the refrigeration capacity by the cooling roller 7 will not fully reduce the temperature of the quenching alloy 8 solidified in contact with a cooling roller 7.

[0167] Although it contracts on the occasion of coagulation, the quenching alloy 8 cannot exfoliate easily from the rotating cooling roller 7, and becomes easy to coil around a cooling roller 7, so that this solidification shrinkage becomes inadequate. If the ribbon-like quenching alloy 8 coils around a cooling roller 7, it will become impossible to continue a cooling process. When based especially on the strip cast method, there is a problem that the quenching alloy 8 tends to coil [the roll hoop direction size of the part to which the molten metal touches the roll surface] around a cooling roller 7 since it is long compared with a melt spinning process.

[0168] On the other hand, as shown in drawing 6, since refrigeration capacity becomes high, it is easy [in order to inject a comparatively little alloy molten metal on the front face of a cooling roller 7 through a nozzle and to force a molten metal on a roll surface, even when the surface roughness of a cooling roller 7 is large the adhesion between a roll surface and a molten metal is good, and] according to the melt spinning process, to cool an alloy molten metal to homogeneity at sufficient rate.

[0169] If high-speed rotation of the cooling roller 7 is carried out with the peripheral velocity of 10m/second or more when being based on the strip cast method of the type adopted by this invention, as explained above, center line granularity Ra in the front face of a cooling roller 7 will have effect important for coiling round to the cooling roller 7 of the quenching alloy 8. If center line granularity Ra in the front face of a cooling roller 7 was 20 micrometers or less, since sufficient cooling effect would be acquired according to the experiment of this invention person, it turned out that it can prevent that the quenching alloy 8 coils around a cooling roller 7.

[0170] From the above thing, center line granularity Ra on the front face of a cooling roller is set as 20 micrometers or less by this invention. In addition, in order to continue the operation stabilized on mass-production level, as for center line granularity Ra on the front face of a cooling roller, it is desirable to set it as 13 micrometers or less, and it is still more desirable to set it as 7 micrometers or less.

[0171] Moreover, as shown in drawing 3 and drawing 4, in order to form the paddle 6 suitable on the front face of the cooling roller 7 which carries out high-speed rotation of the chute 5 top with which the alloy molten metal 3 inclined in order to flow slowly by the strip cast method adopted by this invention, the magnitude of the kinematic viscosity of the alloy molten metal 3 is important. According to the experiment, when the kinematic viscosity of the alloy molten metal 3 exceeded a $5 \times 10^{-6} \text{m}^2/\text{second}$, it turned out that a paddle 6 is not formed on a cooling roller 7, and a molten metal 3 will serve as a splash and it will not quench it. For this reason, as for the kinematic viscosity of the alloy molten metal 3, it is desirable to adjust below to a $5 \times 10^{-6} \text{m}^2/\text{second}$, and it is still more desirable to adjust below to a $1 \times 10^{-7} \text{m}^2/\text{second}$.

[0172] If the skin temperature of the above-mentioned chute 5 is too low, before flowing and arriving at a cooling roller 7, the kinematic viscosity of the alloy molten metal 3 may become high too much. When the skin temperature of chute 5 is 300 degrees C or less, in order that a molten metal may be cooled on chute 5 and kinematic viscosity may exceed a $5 \times 10^{-6} \text{m}^2/\text{second}$, as for the skin temperature of chute 5, it is desirable to hold at 300 degrees C or more. As for the skin temperature of chute 5, it is desirable to hold at 450 degrees C or more, and it is still more

desirable to hold at 550 degrees C or more.

[0173] Boron nitride (BN) besides ceramic ingredients, such as an alumina, a silica, a zirconia, a magnesia, and a mullite, can be used for the quality of the material of chute 5. It is desirable to use the ingredient which contains the alumina (aluminum $2O_3$) which is excellent in "wettability" with the molten metal of an iron machine rare earth alloy, and cannot react easily with rare earth more than 80 volume %. Moreover, in order to make it chute 5 not break by the heat shock, porous ceramics are more desirable than the substantia compacta. However, as for the front face of the chute with which a molten metal flows, smoothing as much as possible is desirable.

[0174] In order to be stabilized with a cooling roller 7 and to quench an alloy molten metal, it is desirable that thermal conductivity produces a cooling roller using the base material of 50 or more W/m/K. As a base material of such a cooling roller 7, iron besides copper and a copper alloy, carbon steel, a tungsten, molybdenum, beryllium, and a tantalum can be used. In order to be stabilized and to cool a molten metal, especially the thing for which the copper whose heat conduction is 100 or more W/m/K and a copper alloy or a tungsten, molybdenum, and beryllium are used is desirable.

[0175] It is desirable to carry out a coat with the plating which combined chromium with a thickness of 1 micrometer - 100 micrometers, nickel, or them with the front face of the base material of a cooling roller 7. Thereby, the fault of a cooling roller base material with a low degree of hardness is suppliable low [the copper melting point]. Moreover, melting and the blemish of the roll base material generated during molten metal cooling in a roll surface can be controlled. Consequently, center line granularity Ra of a roll surface can be held to 20 micrometers or less for a long period of time. As for the thickness of the plating film, it is desirable that it is within the limits of 1 micrometer - 100 micrometers from a viewpoint of film reinforcement and heat conduction. The still more desirable thickness of the plating film is 5 micrometers - 70 micrometers, and the most desirable thickness is 10 micrometers - 40 micrometers.

[0176] In addition, when the molten metal quenching processing speed per line of the alloy molten metal 3 is the following by 1kg/, a paddle 6 is not formed on a cooling roller and the stable molten metal quenching condition cannot be maintained. On the other hand, if the molten metal quenching processing speed per line of the alloy molten metal 3 becomes above by 4kg/, since a molten metal 3 will be supplied more than the volume of the paddle 6 which can be formed in a roll surface, the excessive molten metal 3 serves as a splash, and it does not quench it. Therefore, as for the molten metal quenching processing speed per line of the alloy molten metal 3, it is desirable that it is [0.7kg] the following by 4kg/above by /. Furthermore, the desirable range is the following by 3kg/above by 1kg/, and the most desirable range is the following by 2kg/above by 1kg/. It is desirable to make into two or more articles the molten metal supplied on a cooling roller using a guide as shown in drawing 4 from a viewpoint of mass-production nature. When passing the molten metal of two or more articles, it is desirable to prepare suitable spacing which molten metals do not contact.

[0177] With this operation gestalt, the roll surface velocity of a cooling roller 7 is set [second] up a second in 10m /or more 26m /or less. An alpha-Fe phase can control a deposit more effectively because roll surface velocity carries out [second] in 10m /or more. However, if roll surface peripheral velocity exceeds a second in 26m /, the paddle 6 of the molten metal which should be generated on a roll is not stabilized, and since it will be in the condition that a molten metal can bound off (a splash occurs), a desired molten metal quenching condition cannot be

acquired. The more desirable upper limit of roll surface velocity is 23m/second or less, and a still more desirable upper limit is 20m/second or less.

[0178] The generation condition of a paddle 6 is influenced by not only except roll surface velocity but the molten metal speed of supply to a cooling roller 7. In order to maintain the generation condition of the stable paddle 6, it is desirable to adjust within limits which mentioned above the molten metal speed of supply per flow of the molten metal supplied to a cooling roller 7.

[0179] With this operation gestalt, the pressure of quenching ***** is adjusted to 0.13 or more-kPa less than 100 kPa. When the pressure of a quenching ambient atmosphere is set to less than 0.13 kPas, an alloy molten metal sticks to a cooling roller front face, and there is a possibility that it may become impossible to exfoliate a quenching alloy from a roll. On the other hand, if the pressure of a quenching ambient atmosphere becomes large exceeding 100kPa(s), a controlled atmosphere will be involved in between a cooling roller front face and an alloy molten metal, and it will become easy to produce a gas pocket. If a gas pocket is formed, since a uniform quenching condition will not be acquired but it will become a heterogeneous quenching organization, it is stabilized and it becomes impossible to acquire a supercooling condition. The desirable pressure range of a quenching ambient atmosphere is [10 or more kPas 70 or less kPa and the still more desirable range of 1.3 or more kPas 90 or less kPa and the more desirable range] 10 or more-kPa 60 or less kPa. The most desirable range is 30 or more-kPa 50 or less kPa.

[0180] Since the adhesion of the alloy molten metal to a cooling roller front face improves and the high cooling effect is given to homogeneity when quenching an alloy molten metal as mentioned above, a quenching alloy is formed appropriately and the trouble of coiling around a cooling roller stops almost arising.

[0181] [Organization of quenching alloy] drawing 7 shows typically how the cross-section organization of a quenching alloy changes by the existence of addition of Ti.

[0182] First, since the quenching alloy (ribbon) produced by the strip cast method becomes thicker than the quenching alloy produced by the melt spinning process, crystal grain is formed near the free surface (the field which does not contact a cooling roller: upper limit side) of a quenching alloy, so that drawing 7 may show. Moreover, crystal grain is formed also [near the roll side (the field in contact with a cooling roller: lower limit side)]. This is for an ununiformity nucleus to tends to be generated by the roll side and for crystal growth to tend to advance around an ununiformity nucleus. With the quenching alloy which is at the strip cast method and was produced, the size of crystal grain and the volume density of crystal grain become small as a film center section is approached from each end face.

[0183] When Ti is added, the crystal grain formed is generally small, especially alpha-Fe is detailed and there are also few numbers. And in the membranous center section, the crystalline substance layer which an amorphous part tends to exist and is formed in a roll side side is thinner than the crystalline substance layer formed in a free-surface side. Furthermore, when Ti is added, iron machine boride (Fe-B) deposits. On the other hand, when Ti is not added, the size of crystal grain is large and especially its alpha-Fe is big and rough. As for the cooling rate of a free surface, big and rough crystal grain becomes is easy to be formed in a free-surface side, so that a quenching alloy becomes thick, in order to fall so that a quenching alloy becomes thick. For this reason, the magnet property finally acquired will fall, so that a quenching alloy is thickened. However, since addition of Ti has the effectiveness which controls big and rough-ization of crystal grain, it becomes easy to form a quenching alloy thickly. In the case of this operation

gestalt, it is possible to set the thickness of a quenching alloy as the range of about 50-200 micrometers. From the configuration of the powder particle after grinding which can be set, or a viewpoint of magnetic properties, the desirable thickness of a quenching alloy is 60-150 micrometers, and still more desirable thickness is 70-120 micrometers. Thus, according to this invention, a nano composite magnet with the magnetic properties which produced the quenching alloy with a difficult thickness of 80 micrometers or more, and were excellent in the conventional technique can be obtained. In addition, in drawing 7, the twist has also actually indicated each crystal grain greatly typically. The size of each actual crystal grain is small to extent which is not illustratable.

[0184] According to the high-speed strip cast method concerning this operation gestalt, in the cross-section central part of a quenching alloy, even if an amorphous substance exists, a crystalline substance part exists in a free-surface and roll side (two end faces which cross thickness direction) side. And since big and rough-ization of α -Fe is controlled when Ti is added, it becomes the thing excellent in the magnet property. the peripheral velocity of a cooling roller is markedly alike from before as a strip cast method, since it is quick, crystal grain is not made big and rough, but a quenching alloy with the organization suitable for a nano composite magnet is obtained. Moreover, since the alloy after quenching (ribbon) has the organization in which a crystal phase exists near both sides of the free surface and a roll side, even when grinding a quenching alloy before heat treatment, grinding of a quenching alloy becomes easy and its efficiency of comminution improves.

[0185] In addition, in order to continue holding magnetization of sufficient level even if a strong demagnetizing field acts on a magnet when the nano composite magnet finally obtained by the manufacture approach of this operation gestalt is used for a motor, to have the high proper coercive force H_cJ of 600 or more kA/m is desired. Thus, in order to realize high coercive force, it is necessary to make the rate of a volume ratio of the $R_2Fe_{14}B$ mold compound phase contained all over the metal texture of a quenching alloy 60% or more.

[0186] The presentation of the iron machine rare earth alloy in this operation gestalt has low R concentration compared with the stoichiometric composition of an $R_2Fe_{14}B$ -phase mold compound, and is high. [of B concentration] In such a presentation, B which exists superfluously combines with iron and becomes easy to form iron machine boride by addition of Ti. The iron machine boride obtained by addition of Ti has the size of nano meter order, and is ferromagnetism. It becomes possible to discover the hard magnetic property of the iron machine rare earth alloy magnet which has the same stoichiometric composition as $R_2Fe_{14}B$, and equivalent level, without addition of Ti not only controlling the big and rough deposit of Fe, but this iron machine boride and an $R_2Fe_{14}B$ mold compound phase joining together firmly, and inviting the fall of magnetization by the exchange interaction, in order to generate the above-mentioned detailed ferromagnetic iron machine boride.

[0187] Since the value of saturation magnetization contains [in the case of the iron machine rare earth alloy magnet in this operation gestalt] the soft magnetism iron machine boride more than $R_2Fe_{14}B$ phase and equivalent level in the same in-house in addition to the $R_2Fe_{14}B$ phase which is hard magnetism, magnetic recoil permeability μ_r becomes high with the alloy which has the comparable coercive force H_cJ compared with the iron machine rare earth alloy magnet which does not contain iron machine boride. The presentation ratio y of rare earth R shows the value of 1.1-1.4 in the range of under 10 atom % more than 8.5 atom %, and, specifically, as for recoil permeability μ_r in the iron machine rare earth alloy magnet of this operation gestalt, the presentation ratio y shows the value of 1.2-2.0 in the range below 8.5 atom % more than 7 atom

%. In addition, as for the residual magnetic flux density B_r of the magnet of this operation gestalt, the presentation ratio γ of 0.7-0.9T, and coercive force H_cJ is 600 - 1200 kA/m in the range under of 10 atom % more than 8.5 atom %, and, as for a residual magnetic flux density B_r , the presentation ratio γ of 0.75-0.95T, and coercive force H_cJ is 500 - 950 kA/m in the range below 8.5 atom % more than 7 atom %. In addition, measurement of recoil permeability μ_r . It carried out to C 2501-1989 of JIS by the approach of a publication. Recoil permeability μ_r is the parameter of a proper at the alloy which the alloy with which nano composite structure was formed, i.e., a hard magnetism phase, and the soft magnetism phase crystallized, and was magnetically combined by the exchange interaction.

[0188] Recoil permeability μ_r becomes an important index, when using a magnet for a motor and evaluating the magnetic engine performance. Hereafter, this point is explained. That is, if the rotational speed of a motor is made to increase, when back EMF will increase and the magnitude of back EMF will become equal to input voltage, the rise of a motor rotational frequency stops. In order to raise the rotational frequency of a motor further, when the magnet operating point ($-B/H$) lowers to a low permeance side electrically, it is necessary to make back EMF low (field-weakening control). The effectiveness of raising the upper limit of a motor rotational frequency further by such control is so remarkable that magnetic recoil permeability μ_r is high. The magnet by this invention is suitably used to a motor, in order to show recoil permeability μ_r high as mentioned above.

[0189] in addition, since it is late, if Ti is not added compared with the peripheral velocity (for example, 20m/(second) or more) realized by the melt spinning process although it is [that the peripheral velocity of a cooling roller is / as a strip cast method / this invention / former / alike, and] quick, α -Fe will have priority over an $R_2Fe_{14}B$ system compound, and it will deposit, and will be made big and rough.

[0190] The quenching alloy obtained by the quenching approach explained above receives heat treatment, after being ground.

[0191] The size (mean particle diameter or average major-axis die length) of the $R_2Fe_{14}B$ mold compound phase in the alloy after heat treatment needs to be set to 300nm or less which is uniaxial crystal particle size, it is desirable that it is [20nm or more] 200nm or less, and it is still more desirable that it is [20nm or more] 100nm or less. On the other hand, if the diameter of average crystal grain of an iron machine boride phase or an α -Fe phase exceeds 50nm, since the exchange interaction committed to each configuration interphase will become weaker and the square shape nature of a demagnetization curve will deteriorate, $(BH)_{max}$ will fall. If these diameters of average crystal grain are less than 1nm, it becomes impossible to acquire high coercive force. As for the mean particle diameter of soft magnetism phases, such as a boride phase from the above thing, and an α -Fe phase, it is desirable that it is [1nm or more] 50nm or less, and it is still more desirable that it is 30nm or less.

[0192] The size (particle size) of the powder particle finally obtained from the alloy produced by the manufacture approach by this invention is 10-300 micrometers preferably, and is 50-150 micrometers more preferably. Furthermore, the range of a desirable particle size is 80-110 micrometers.

[0193] In this way, the average percentage (aspect ratio) of minor-axis size to the major-axis size of the obtained powder particle is 0.3 to about 1.0. To powder particle size, since it is thick enough, the powder particle of the configuration near a homaxial configuration is easy to obtain the thickness of the quenching alloy produced with this operation gestalt. On the other hand, since the thickness of the quenching alloy produced by the usual melt spinning is as thin as about

20-40 micrometers, on the same grinding conditions as this operation gestalt, the powder particle of the shape of a small flake of an aspect ratio is obtained. Since the powder obtained with this operation gestalt has an aspect ratio close to 1, it is excellent in restoration nature or a fluidity, and the the best for a bond magnet.

[0194] Thus, the coercive force H_cJ of the obtained magnetic powder can show the value of 600 or more kA/m.

[0195] It explains comparing with the conventional quenching magnet powder the oxidation resistance of the magnetic powder (nano composite magnetic powder is called hereafter.) finally obtained from an alloy by the manufacture approach by [particle-size-distribution dependency of oxidation resistance [of magnetic powder], and magnetic properties] this invention, and the particle-size-distribution dependency of magnetic properties.

[0196] Here, the nano composite magnetic powder by this invention is compared with MQP-B and MQP-O (for all, a maximum grain size is 300 micrometers or less) which are marketed from MQI as conventional quenching magnet powder. In addition, the sample of the nano composite magnetic powder by this invention is the following, and was made and produced.

[0197] first, the quenching alloy (Nd:9 atom % --) produced by the same approach as the example 1 mentioned later B:11 atom %, Ti:3 atom %, Co:2 atom %, the alloy of Remainder Fe, Average thickness : After grinding 70 micrometers and the standard deviation of sigma:13 micrometers to 850 micrometers or less, It heat-treated by throwing in powder using the hoop belt furnace which has a soaking zone with a die length of about 500mm with 20g speed of supply for /the bottom of Ar style mind, and into the furnace part [for belt feed-rate/of 100mm] held at 680 degrees C, and magnetic powder was obtained. That to which the aspect ratio ground the obtained magnetic powder using the pin disc mill so that it might become the particle size distribution included about 30% on volume criteria about or more 0.4 1.0 or less powder was set to sample NCP-0 of nano composite magnetic powder.

[0198] Oxygen content and magnetic properties after leaving each magnetic powder in atmospheric air for 1 hour at various temperature (23 degrees C, 300 degrees C, and 350 degrees C) are shown in Table 1. Magnetic properties were measured using the oscillating-type magnetometer. With the result measured at 23 degrees C, the result measured after leaving it at 300 degrees C and 350 degrees C in atmospheric air for 1 hour, respectively is doubled and shown.

[0199] As shown in Table 1, when it was left at 300 degrees C in atmospheric air for 1 hour, the oxygen content increased to 0.67 mass %, and when MQP-B was left at 350 degrees C for 1 hour, it increased to 1.93 mass %. When it was left at 300 degrees C for 1 hour, the oxygen content increased to 0.24 mass %, and when MQP-O was left at 350 degrees C for 1 hour, it increased to 0.59 mass %.

[0200] On the other hand, the oxygen content after an oxygen content's increasing only to 0.10 mass % even if it leaves nano composite magnetic powder NCP-0 at 300 degrees C in atmospheric air for 1 hour, but leaving it at 350 degrees C for 1 hour is to 0.20 mass %, and it turns out that it excels in oxidation resistance as compared with the conventional quenching magnet powder.

[0201] Moreover, the result of having measured the heating mass rate of increase of each magnetic powder using the thermobalance is shown in drawing 15 . In addition, the heating ambient atmosphere considered the programming rate as a part for 10-degree-C/in atmospheric air. Nano composite magnetic powder NCP-0 has few increments in mass by oxidation compared with MQP-B or MQP-O, and it is excellent in oxidation resistance so that drawing 15 may show.

[0202] Next, when seen about the magnetic properties of Table 1, the fall of magnetic properties of MQP-B was also remarkable, for example, although (BH) max was left at 23 degrees C for 1 hour when it was left at 300 degrees C for 1 hour, when it fell to about 65% and was left at 350 degrees C for 1 hour, it fell to about 30%. Moreover, although (BH) max of MQP-O was left at 23 degrees C for 1 hour when it was left at 350 degrees C for 1 hour, it fell to less than about 80%. On the other hand, even if it left nano composite magnetic powder NCP-0 at 350 degrees C for 1 hour, although the (BH) max was left at 23 degrees C for 1 hour, it fell only to about 90%.

[0203] Thus, since nano composite magnetic powder is excellent in oxidation resistance, in the process (for example, preparation and/or heat curing of a compound) which produces a bond magnet, magnetic powder cannot oxidize easily. Therefore, in order to control oxidation of magnetic powder, rustproofing of the required magnetic powder can be simplified or omitted with the conventional quenching magnet powder (especially MQP-B). Moreover, it is necessary to heat resin, for example, and the Plastic solid produced by fabricating a compound needs to harden it in order to raise the reinforcement. Although heat hardening needed to be carried out in inert gas ambient atmospheres, such as a vacuum or Ar, in order to control oxidation of magnetic powder when the conventional quenching magnet powder was used, it becomes possible by using nano composite magnetic powder to carry out heat hardening in atmospheric air. That is, by using nano composite magnetic powder, the production process of a bond magnet can be simplified and cost can be reduced. Furthermore, although it was difficult for the conventional quenching magnet powder to apply to resin and the bond magnet for injection molding which needs the process to knead and the process to fabricate, for example at the temperature of 250 degrees C - about 300 degrees C since oxidation resistance was low, it can obtain the bond magnet produced by injection molding by using nano composite magnetic powder. It is desirable to use the magnetic powder prepared so that the oxygen content after leaving it in 1-hour atmospheric air at 300-degree-C or more temperature of 350 degrees C or less might become below 0.24 mass %, in order to fully acquire the oxidation-resistant advantage which was excellent in nano composite magnetic powder, and it is desirable to use the magnetic powder prepared so that the above-mentioned oxygen content might become below 0.2 mass %. For example, when the magnetic properties for which the bond magnet for various rotating machines or actuators is asked are taken into consideration, as magnetic properties of the magnetic powder used suitable for these bond magnets, it is in a final condition, and it is desirable to satisfy $B_r \geq 0.7T$, $(BH)_{max} \geq 80 \text{ kJ/m}^3$, and $H_cJ \geq 600 \text{ kA/m}$. If the magnetic powder which has above-mentioned oxidation resistance is used, even if it takes into consideration the effect of the oxidation in the making process of a bond magnet, the above-mentioned magnetic properties can be acquired.

[0204]

[Table 1]

[0205] The nano composite magnetic powder by this invention has the description that a particle-size dependency is small, in the magnetic properties for the description of the presentation and an organization. Nano composite magnetic powder has the comparatively low content of rare earth elements R, the small boride phase is distributing so that R may enclose $R_2Fe_{14}B$ phase in addition to a rich grain boundary phase not existing, and further, since compatibility of Ti with boron is high, the boride phase contains many Ti rather than other phases. Consequently, nano composite magnetic powder is excellent in oxidation resistance compared with the conventional quenching magnet powder, and after pulverizing outstanding magnetic properties, it can be maintained.

[0206] Since the conventional quenching magnet powder contains comparatively a lot of rare earth elements R, it tends to oxidize, and it becomes remarkable falling [of the magnetic properties by oxidation of a powder particle front face] it, so that particle size is small. For example, in MQP-B (300 micrometers or less of maximum grain sizes), as shown in Table 2, the magnetic properties of a powder particle 53 micrometers or less are falling [particle size] especially by 75 micrometers or less. 125 micrometers which shows the highest value if it sees about a residual magnetic flux density Br -- super- -- the residual magnetic flux density Br (0.79T) of a powder particle 53 micrometers or less is falling to less than 90% to the residual magnetic flux density Br (0.90T) of a powder particle 150 micrometers or less. moreover -- if it sees about (BH) max -- (BH) max (38 micrometers or less and 38 micrometers -- super- -- an arithmetic average with a value of 53 micrometers or less) of an average of a powder particle 53 micrometers or less -- 85.5 kJ/m³ -- it is -- 150 micrometers -- super- -- it is falling to less than 75% of 114.6 kJ/m³ which is (BH) max(es) (150 micrometers -- super- -- 180 micrometers or less and 180 micrometers -- super- -- an arithmetic average with a value of 212 micrometers or less) of an average of a powder particle 212 micrometers or less.

[0207] On the other hand, nano composite magnetic powder has the low rate of a fall of the magnetic properties by oxidation, and its particle-size dependency of magnetic properties is small. For example, in nano composite magnetic powder NCP-0 (300 micrometers or less of maximum grain sizes), as shown in Table 3, it is hardly dependent on particle size, and magnetic properties have outstanding magnetic properties. for example, 106 micrometers which shows the value with the highest residual magnetic flux density Br -- super- -- the residual magnetic flux density Br (about 0.829 T) of a powder particle 53 micrometers or less has 98% or more of value to the residual magnetic flux density Br (0.845T) of a powder particle 125 micrometers or less. moreover, (BH) max -- just -- (BH) max of an average of ** and a powder particle 53 micrometers or less -- 104.6 kJ/m³ -- it is -- 150 micrometers -- super- -- it has 98% or more of

value of 106.6 kJ/m³ which is (BH) max(es) of an average of a powder particle 212 micrometers or less. the result of having performed evaluation same about the nano composite magnetic powder of various presentations -- (BH) max of the average of the powder particle 53 micrometers or less of nano composite magnetic powder about almost all presentations -- 150 micrometers -- super- -- it turned out that it has 90% or more of value of (BH) max of the average of a powder particle 212 micrometers or less, and 95% or more of value is acquired about many presentations. In addition, evaluation of the particle size distribution of magnetic powder was performed using the standard sieve of JIS8801 conformity.

[0208]

[Table 2]

[0209]

[Table 3]

[0210] Thus, since nano composite magnetic powder has the conventional quenching magnet powder and the magnetic properties more than equivalent, it can be used as magnetic powder for bond magnets instead of the conventional quenching magnet powder (for example, MQ powder). Of course, although the magnetic powder for bond magnets may be constituted only from nano composite magnetic powder, the particle size of the MQ powder mentioned above may transpose a powder particle 53 micrometers or less to nano composite magnetic powder, for example.

[0211] The effectiveness that restoration nature is improved by mixing a particle (53

micrometers or less and 38 micrometers or less) in below is explained illustrating an experimental result.

[0212] First, sample NCP-1 to NCP-5 of nano composite magnetic powder which has various particle size distributions as shown in Table 4 were produced. In addition, the magnetic powder of NCP-1 was prepared by grinding with a power mill using the screen of 0.5mmphi, and other magnetic powder of NCP-2-NCP-5 was prepared using the pin mill equipment mentioned above by setting a rotational frequency to 3000rpm, 4000rpm, 5000rpm, and 8000rpm, respectively. The result of having measured tap density for these magnetic powder sample NCP-1 to NCP-5 using tap DENSA is shown in Table 5. Mass [of a powder particle 53 micrometers or less] % and particle size double mass % of the powder particle of 250-micrometer **, and the particle size contained in each magnetic powder sample shows in Table 5.

[0213] Sample NCP-3-NCP-5 in which particle size contains a particle 53 micrometers or less more than 10 mass % (strictly more than 9.5 mass %) have tap density as high as three or more 4.3 g/cm, and it turns out that the restoration nature of magnetic powder is excellent so that the result of Table 5 may show. The restoration nature of the magnetic powder evaluated by tap density of magnetic powder correlates with the restoration nature of the powder of the compound for bond magnets, and the restoration nature of the powder of a compound prepared using the high magnetic powder of restoration nature also becomes high. Therefore, by using the magnetic powder with which particle size 10 mass % Contains nano composite magnetic powder 53 micrometers or less, the restoration nature of the powder of the compound for bond magnets and a fluidity are improved, and the Plastic solid of high quality can be acquired.

[0214]

[Table 4]

[0215]

[Table 5]

[0216] Furthermore, in order to improve a shaping consistency, it is desirable that particle size contains a powder particle 38 micrometers or less. Nano composite magnetic powder NCP-11 to NCP-16 which have the particle size distribution shown in Table 6 were prepared, and the compound was obtained by mixing with the epoxy resin of 2 mass %, respectively. The bond magnet Plastic solid was acquired by pressing by compacting pressure 980MPa (10t/cm²) using each compound. The particle size in the magnetic powder used for each compound shows the consistency of each bond magnet Plastic solid to drawing 16 with the content of a powder particle 38 micrometers or less.

[0217]

[Table 6]

[0218] Even if the content of a powder particle 38 micrometers or less is too low and it is too high so that drawing 16 may show, the consistency of a Plastic solid falls. As a result of examining many things, in order to obtain sufficient Plastic solid consistency, it is desirable to use the magnetic powder with which particle size contains a powder particle 38 micrometers or less more than about 8 mass %. However, if particle size uses the magnetic powder with which the content of a powder particle 38 micrometers or less exceeds about 16 mass %, a moldability falls and the high-definition Plastic solid of a high consistency may not be acquired.

[0219] [Explanation of the manufacture approach of a compound and a magnet object] The magnetic powder for bond magnets containing above-mentioned nano composite magnetic powder is mixed with binders, such as resin, and the compound for bond magnets is manufactured.

[0220] The compound for injection molding is manufactured by kneading magnetic powder and thermoplastics using well-known kneading equipment (for example, a kneader and an extruder). Moreover, the compound for compression molding mixes the thermosetting resin and magnetic powder which were diluted with the solvent, and is manufactured by removing a solvent. If needed, the mixture of the magnetic powder and resin which were obtained is cracked so that it may become a predetermined grain size. By adjusting the conditions of a crack etc., it is good also as granularity. Moreover, you may corn the powder ingredient obtained by grinding.

[0221] In order to improve the corrosion resistance of magnetic powder, well-known surface treatment, such as chemical conversion, may be beforehand performed on the surface of magnetic powder. Furthermore, in order to improve further the corrosion resistance of magnetic powder, wettability with resin, and the moldability of a compound, lubricant, such as a ceramic

ultrafine particle, zinc stearates, calcium stearates, etc., such as various coupling agents, such as a silane system, a titanate system, an aluminates system, and a zirconate system, and colloidal silica, may be used, and a thermostabilizer, a flame retarder, a plasticizer, etc. may be used.

[0222] Since the compound for magnets is used for applications various by the various shaping approaches, according to an application, the class of resin and the rate of a compounding ratio of magnetic powder are decided suitably. As resin, these denaturation objects, a copolymer, mixture, etc. can be used for thermoplastics, such as thermosetting resin, such as an epoxy resin, phenol resin, and melamine resin, polyamides (Nylon 66, nylon 6, Nylon 12, etc.), and polyethylene, polypropylene, a polyvinyl chloride, polyester, polyphenylene sulfide, rubber, an elastomer, and a pan, for example.

[0223] Furthermore, since the restoration nature and/or the moldability of a compound are improved with the magnetic powder of this invention, the resin of the hyperviscosity for which using conventionally was difficult can also be used. Furthermore, since the resin (for example, the amount grade article of giant molecules of various resin, such as polyimide and a liquid crystal polymer) which the melting point or softening temperature is high, and was not able to be conventionally used since magnetic powder could not oxidize easily can be used, the properties (thermal resistance etc.) of a bond magnet are improvable. Moreover, when using thermosetting resin, the resin hardened at temperature higher than before can be used.

[0224] As the shaping approach, compression molding, rolling shaping, calender shaping, extrusion molding, and injection molding can be illustrated. Among these shaping approaches, although only the Plastic solid of a comparatively simple configuration can be fabricated in compression molding, rolling shaping, and extrusion molding, since a not much high fluidity is not required at the time of shaping, in them, the filling factor of magnet powder can be made high. By using the magnetic powder by this invention, a magnetic powder filling factor still higher (for example, it exceeds 80%) than before can be realized, and it can be filled up to about 90% at the maximum. However, since the resin for fully combining magnetic powder runs short and there are a fall of the mechanical reinforcement of a bond magnet and a possibility that omission of magnetic powder may arise at the time of use when a filling factor is gathered too much, 85% or less of a magnetic powder filling factor is desirable. Moreover, the advantage that the bad influence to the resin coat which can decrease in number and forms in a front face the amount of the opening (void) formed on the surface of a Plastic solid can be controlled is acquired by using the magnetic powder of this invention in compression molding. Thermosetting resin, thermoplastics, rubber, etc. are suitably used for these shaping approaches.

[0225] Since a fluidity will improve if the magnetic powder by this invention is used, it is used especially suitable for the compound for injection molding. In the compound using the conventional quenching magnet powder, shaping can acquire the Plastic solid of the difficult complicated configuration. Moreover, since magnet powder can be blended by the filling factor (for example, it exceeds 65%) higher than before, the magnetic properties of a magnet object can be improved. Furthermore, since there is comparatively little content of rare earth elements, the magnetic powder by this invention cannot oxidize easily. Therefore, using thermoplastics or thermoplastic elastomer with comparatively high softening temperature, even if it performs injection molding at comparatively high temperature, magnetic properties do not fall.

[0226] It excels in thermal resistance, and since the bond magnet using the conventional quenching magnet powder and the bond magnet which has the magnetic properties more than equivalent can be formed, the compound for bond magnets by [application of bond magnet] this invention is used suitable for various applications, while having the outstanding restoration

nature (moldability) compared with the compound using the conventional quenching magnet powder (for example, product name MQP-B made from MQI), as mentioned above.

[0227] The example applied to the stepping motor is explained referring to drawing 17.

[0228] Drawing 17 is the decomposition perspective view showing typically the configuration of the stepping motor 100 equipped with a permanent magnet rotator mold. The stepping motor 100 has the stator section 102 prepared around Rota 101 and Rota 101. Rota 101 is equipped with the bond magnet which magnetized the peripheral face with an outer diameter of 8mm equally to the ten poles. The stator section 102 is equipped with outside York 102a and 102b, two inner York 103 mutually joined to these back to back, and the exiting coils 104a and 104b held among these. This stepping motor 100 is the so-called PM mold pulse motor which performs actuation whose Rota 101 displaces only 1 step angle with the magnetomotive force of the exiting coils 104a and 104b corresponding to 1 pulse current.

[0229] The bond magnet with which Rota 101 is equipped is excellent in a mechanical property, does not have a possibility that a chip etc. may occur and is excellent in dependability while it is formed using the compound excellent in the restoration nature (moldability) by this invention mentioned above and has the magnetic properties more than the bond magnet using the conventional quenching magnet powder, and an EQC. Moreover, it excels also in thermal resistance.

[0230] A stepping motor equipped with the bond magnet formed using the compound by such this invention is small and highly efficient, and is excellent in dependability, and is used suitable for AV equipments, such as OA equipment and cameras, such as a printer and disk drive equipment, and video, etc.

[0231] Rota 101 can be manufactured by various approaches. For example, you may form by pressing the compound using thermosetting resin, and the compound using thermoplastics may be formed injection molding or by carrying out extrusion molding. Hereafter, the manufacture approach of Rota 101 is explained, referring to drawing 18.

[0232] For example, when using the compound which uses thermosetting resin as a binder, Rota 200 of a die can really [bond magnet] which is shown in drawing 18 (d) be produced by adopting the shaping approach which is explained while referring to drawing 18 (a) - (c).

[0233] Rota 200 shown in drawing 18 (d) is equipped with a rotor shaft 205, York 208 established in the surroundings of it, and the bond magnet 210. The bond magnet 210 is pasted up on the front face 212 of York 208.

[0234] Rota 200 is manufactured at the process shown in (c) from drawing 18 (a).

[0235] First, it is filled up with a compound 201 in a cavity 202, sliding first the feeder box 203 in which the powder-like compound 201 was held on the top face of metal mold 204, as shown in drawing 18 (a). York 208 where the rotor shaft 205 was pressed fit in the center is set to metal mold 204, and the auxiliary member 207 is formed so that a rotor shaft 205 may be covered. The cavity 202 is formed between metal mold 204 and these.

[0236] Next, for example, as shown in drawing 18 (b), York 208 and the Plastic solid of a compound 201 are physically combined by pressing a compound 201 through upper punch 209.

[0237] Next, as shown in drawing 18 (c), the Rota Plastic solid is picked out from metal mold 204. It is removed simply [an auxiliary member] from a rotor shaft 205 and York 208 by 207, and a rotor shaft 205, York 208, and the bond magnet 210 are unified. However, in this condition, the bond magnet 210 is the powder-molding object of a compound, and has not hardened the thermosetting resin contained in the compound.

[0238] Next, in order to harden the bond magnet 210, and in order to strengthen the junction in

the interface 212 of York 208 and the bond magnet 210, a compound is stiffened at predetermined temperature. Curing temperature and the setting time are suitably set up according to the resin to be used.

[0239] Since the compound by this invention contains the magnetic powder which is excellent in thermal resistance, it may be a compound suitably hardened with curing temperature higher than before. Therefore, the bond magnet 210 excellent in thermal resistance, a mechanical characteristic, and bond strength can be formed conventionally. Furthermore, since the compound by this invention excels [magnetic powder / itself] in corrosion resistance, even if it performs heat-curing processing in atmospheric air, degradation of a magnet property is very small. Therefore, since it is not necessary to perform heat-curing processing by the inert atmosphere, process costs are reducible.

[0240] Since York 208 and a rotor shaft 205, and the bond magnet 210 can be fabricated to coincidence at one according to the shaping approach mentioned above, fabricating the ring-like bond magnet 210, Rota 200 can be manufactured for high productivity.

[0241] In addition, although the example hardened after picking out a Plastic solid from metal mold 204 was explained, a heating device may be prepared in metal mold 204, and you may harden within metal mold 204, and may harden in the condition of having pressurized. Furthermore, it is not restricted to compression molding but die Rota can also really [bond magnet] be formed with injection molding.

[0242] Moreover, since the compound by this invention has high restoration nature (a moldability and/or fluidity) compared with the compound which used the conventional quenching magnet powder, a small gap (for example, about 2mm width of face) can be certainly filled up with it. Therefore, the compound by this invention is used suitable for manufacture of magnet laying-under-the-ground mold Rota 300 (refer to drawing 19) used for an IPM (Interior Permanent Magnet) mold motor.

[0243] Magnet laying-under-the-ground mold Rota 300 shown in drawing 19 is equipped with the revolving-shaft slot 302 formed in the iron core (for example, 50mm in the diameter of 80mm, thickness) 301, and the core of an iron core 301, and two or more arc-like magnet slots 304 formed in the periphery of an iron core 301. Here, eight arc-like magnet slots 304 are established and each slot 304 has the two-layer structure of having 1st slot (for example, width of face of 3.5mm) 304a, and 2nd slot (for example, width of face of 1.8mm) 304b. In these slot 304a and 304b, it is filled up with the compound by this invention, and a bond magnet is formed. When the south pole and N pole combine with the stator (un-illustrating) arranged by turns so that two or more magnet slots 304 of Rota 300 may be countered, an IPM mold motor is obtained.

[0244] Shaping of a bond magnet can be performed by various approaches. For example, when using the compound containing thermosetting resin, compression forming within a slot (for example, refer to JP,63-98108,A) can be adopted. Moreover, when using the compound containing thermoplastics, an extrusion method and an injection-molding method can be adopted. While it can be certainly filled up in slot 304a and 304b and a mechanical characteristic and thermal resistance are excellent since the compound by this invention is excellent in restoration nature when adopting which shaping approach, the bond magnet which has the magnetic properties the former and more than equivalent can be formed. Therefore, it becomes possible to produce a highly reliable small IPM mold motor with high performance conventionally.

[0245] The compound by this invention is used suitable for formation of the bond magnet which

the angle sensor (rotary encoder) 400 shown in drawing 20 (a) has.

[0246] The rotary encoder 411 shown in drawing 20 (a) is equipped with Rota 414 which has a revolving shaft 413, the rotating drum 416 connected with the revolving shaft 413, and two or more bond magnets 415 joined to the peripheral face of a rotating drum 416, and the detector 417 which is estranged to the peripheral face of Rota 414 and has been arranged. If change of the magnetic flux from Rota 414 is detectable, a detector 417 is not limited especially, for example, a hall device, a magnetic resistance element, and the magnetic impedance effectiveness component can be used for it. Moreover, the revolving shaft 413 is connected with the motor 412. The detector 17 is connected to the measurement section which is not illustrated.

[0247] The bond magnet 415 formed using the compound by this invention is the thing of the shape of a cylinder as shown in drawing 20 (b), and N pole and the south pole are arranged by turns along with the peripheral face of a rotating drum 416. Junction to the bond magnet 415 and a rotating drum 416 is performed by adhesives etc. A rotating drum 416 may be formed using a metallic material, and may not be a magnetic material.

[0248] This rotary encoder 400 operates as follows. Rotation of the revolving shaft 413 of a motor 412 rotates Rota 414 according to the rotation. At this time, the sense of the magnetic flux which the bond magnet 415 arranged at the peripheral face of Rota 414 forms in a detector 417 changes according to rotation of Rota 414. A detector 417 generates the output signals (variation of an electrical potential difference, or variation of a current) equivalent to change of the sense of this magnetic flux, and outputs them to the measurement section (un-illustrating). Thus, the rotation (include angle) of a motor 412 is measured.

[0249] Since the compound by this invention can form the bond magnet which is excellent in restoration nature (a moldability, fluidity), and has the magnetic properties the former and more than equivalent, and is excellent in a mechanical characteristic or thermal resistance conventionally, it is small and it becomes possible to produce a reliable angle sensor with high performance.

[0250] Furthermore, the compound by this invention is used suitable for formation of the bond magnet for a magnetic roll explained while referring to drawing 21 (a) and (b).

[0251] Drawing 21 (a) is the sectional view showing the structure of the process cartridge 501 for electrophotography typically. The cartridge 501 has in one the electrification roller 502, the developer 511, and the cleaning equipment 512 for the photoconductor drum 510 by which a rotation drive is carried out, and a photoconductor drum 510 being charged in the direction of arrow-head A.

[0252] A developer 511 is equipped with the development container 509 which holds a toner 513, and the development sleeve 506 is arranged by opening of the development container 509 pivotable so that a photoconductor drum 510 may be countered. Moreover, the developer 511 is equipped with the elastic blade 514, and the elastic blade 514 contacts the development sleeve 506, and it regulates the thickness of the toner 513 in which support conveyance is carried out by the development sleeve 506.

[0253] Drawing 21 (b) is the sectional view showing typically the configuration of the developer 511 which a process cartridge 501 has.

[0254] The development sleeve 506 is formed by the non-magnetic material, and is supported by the development container 509 pivotable through bearing. In the development sleeve (for example, diameter of 10mm) 506, the magnetic roll (for example, diameter of 8.5mm) 507 is arranged. Notch 507a-1 is formed in shank 507a of the magnetic roll 507, and when notch 507a-1 engages with the development container 509, the magnetic roll 507 is being fixed. The

magnetic roll 507 has the development pole S1 in a photoconductor drum 510 and the location which counters, and has S2 pole, N1 pole, and N2 pole in other locations.

[0255] Toner leakage is prevented by arranging the magnet 508 so that the development sleeve 506 may be surrounded, forming a magnetic curtain in the gap g with the development sleeve 506, and holding a toner in a gap with this magnetic curtain.

[0256] Since the magnetic roll 507 is formed using the compound by this invention, it has the conventional magnet and the magnetic properties more than an EQC, and excels also in a mechanical characteristic or thermal resistance. Therefore, the engine performance can be improved while ** which miniaturizes the magnetic roll 507 and the development sleeve 506 further rather than before is possible. The magnetic roll formed using the compound by this invention is applicable also to the developer and development cartridge in a copying machine or a laser beam printer.

[0257]

[Example] (Example 1) It has the presentation shown in the following table 7, weighing capacity of B, Fe, Ti, Nd, and Nb of 99.5% or more of purity was carried out so that a total amount might become 600g (g), and it supplied to the crucible made from an alumina. Then, these alloy raw materials were dissolved in the argon (Ar) ambient atmosphere of pressure 70kPa by high-frequency heating, and the alloy molten metal was produced. After molten metal temperature reached 1500 degrees C, it cast on the copper mold which carried out water cooling, and the plate-like alloy was produced.

[0258] After grinding the obtained alloy, the piece of grinding of 25mg (mg) was dissolved, and the coagulation process of an alloy molten metal was analyzed by part for cooling rate/of 20 degrees C using the differential calorimeter (DTA) in Ar air current. A measurement result is shown in Table 7.

[0259]

[Table 7]

[0260] Sample No.1-5 are the sample which added Nb in addition to Ti here, and sample No.6-7 are the sample which did not add Nb.

[0261] the rightmost column of Table 7 -- each -- the temperature by which the coagulation process of an alloy molten metal is characterized is indicated about the alloy molten metal of sample No.1-7. The temperature "1st [temperature]" is written shows the temperature ("liquidus-line temperature") which the first coagulation produced in the process which cools an alloy molten metal. The temperature "2nd [temperature]" is written shows the temperature ("congealing point") which the next coagulation produced at temperature lower than liquidus-line temperature in the process which cools an alloy molten metal. Specifically, such temperature is

the temperature by which the exothermic peak was observed with the differential heat calorimeter (DTA).

[0262] Drawing 8 is a graph which shows DTA of sample No.2 (Nb addition) and sample No.6 (Nb additive-free). In the case of sample No.2, as compared with sample No.6, the temperature of the first exothermic peak which arises in a cooling process, i.e., liquidus-line temperature, ("1st") is falling by 60 degrees C or more so that clearly from drawing 8 .

[0263] This first exothermic peak may originate in the compound phase of titanium, such as TiB₂, and boron depositing. In this example, since Ti and boron are conventionally added to high concentration, the compound (high-melting) of titanium and boron is easy to be formed, and it is presumed that the deposit temperature is high. By the conventional presentation system (Fe₃B/Nd₂Fe₁₄B system) which does not add Ti, the liquidus-line temperature of an alloy molten metal was about 1200 degrees C or less. By this invention, by adding Nb with Ti, the deposit temperature of such a compound falls and it is thought that the liquidus-line temperature of an alloy molten metal fell.

[0264] To use the alloy of sample No.6 (example of a comparison), it is necessary to perform strip casting with the high tapping temperature of about 1350 degrees C but, and when using the alloy of sample No.2 (example), it is possible to set tapping temperature as about 1250 degrees C. Thus, if tapping temperature is reduced, the R₂Fe₁₄B mold compound which deposits early by the cooling process of a molten metal, and big and rough-ization of TiB₂ will be controlled, and a magnet property will improve.

[0265] (Example 2) It has the presentation shown in the following table 2, weighing capacity of B, Fe, Ti, Nd, and C of 99.5% or more of purity was carried out so that a total amount might be set to 600g, and it supplied to the crucible made from an alumina. Then, these alloy raw materials were dissolved in the argon (Ar) ambient atmosphere of pressure 70kPa by high-frequency heating, and the alloy molten metal was produced. After molten metal temperature reached 1500 degrees C, it cast on the copper mold which carried out water cooling, and the plate-like alloy was produced.

[0266] After grinding the obtained alloy, the piece of grinding of 25mg (mg) was dissolved, and the coagulation process of an alloy molten metal was analyzed by part for cooling rate/of 20 degrees C using the differential heat calorimeter (DTA) in Ar air current. A measurement result is shown in Table 8.

[0267]

[Table 8]

[0268] the sample in which sample No.8-13 added C with Ti here -- it is -- sample No. -- 15 are the sample which did not add 14-C.

[0269] the rightmost column of Table 8 -- each -- the temperature by which the coagulation

process of an alloy molten metal is characterized is indicated about the alloy molten metal of sample No.8-15. The temperature "1st [temperature]" is written shows the temperature ("liquidus-line temperature") which the first coagulation produced in the process which cools an alloy molten metal. The temperature "2nd [temperature]" is written shows the temperature ("congealing point") which the next coagulation produced at temperature lower than liquidus-line temperature in the process which cools an alloy molten metal. Specifically, such temperature is the temperature by which the exothermic peak was observed with the differential heat calorimeter (DTA).

[0270] Drawing 9 is a graph which shows DTA of sample No.8 (C addition) and sample No.14 (C additive-free). In the case of sample No.8, as compared with sample No.14, the temperature of the first exothermic peak which arises in a cooling process, i.e., liquidus-line temperature, ("1st") is falling by about 40 degrees C so that clearly from drawing 9 .

[0271] This first exothermic peak may originate in the compound phase of titanium, such as TiB₂, and boron depositing. In this example, since Ti and boron are conventionally added to high concentration, the compound (high-melting) of titanium and boron is easy to be formed, and it is presumed that the deposit temperature is high. By the conventional presentation system (Fe₃B/Nd₂Fe₁₄B system) which does not add Ti, the liquidus-line temperature of an alloy molten metal was about 1200 degrees C or less. In the example of this invention, by having added C with Ti, the deposit temperature of such a compound falls and it is thought that the liquidus-line temperature of an alloy molten metal fell.

[0272] To use the alloy of sample No.14, it is necessary to perform strip casting etc. with the high tapping temperature of about 1350 degrees C but, and when using the alloy of sample No.8 (example), it is possible to set tapping temperature as about 1300 degrees C. Thus, if tapping temperature is reduced, the R₂Fe₁₄B mold compound which deposits early by the cooling process of a molten metal, and big and rough-ization of TiB₂ will be controlled, and a magnet property will improve.

[0273] Next, it has the presentation shown in Table 8, weighing capacity of B, Fe, Ti, Nd, and C of 99.5% or more of purity was carried out so that a total amount might be set to 15g, and it supplied to the quartz crucible which has an orifice with a diameter of 0.8mm at the pars basilaris ossis occipitalis. Then, these alloy raw materials were dissolved in Ar ambient atmosphere of pressure 1.33-47.92kPa by high-frequency heating, and the alloy molten metal was produced. After molten metal temperature reached 1350 degrees C, the surface of hot water was pressurized by Ar gas, and the molten metal was dropped at the peripheral face of the cooling roller located caudad 0.7mm from the orifice. A cooling roller is a product made from a pure copper, and it was rotated so that a peripheral face rate might become a second in 15m /. Contact to such a cooling roller quenched the alloy molten metal, and it solidified. In this way, the thin band of the continuous rapid solidification alloy with a width of face [of 2-3mm] and a thickness of 20-50 micrometers was obtained. Drawing 10 is a graph which shows the pattern of XRD of sample No.8 and sample No.14. In the case of sample No.8, there are many rates of the crystalline structure to the amorphous substance occupying most sample No.14 so that clearly from drawing 10 .

[0274] This rapid solidification alloy thin band was held for 6 - 8 minutes in [heat-treatment-temperature] 600-800 degrees C in Ar ambient atmosphere, and it cooled to the room temperature after that. Then, the magnetic properties of a quenching alloy thin band (die length of 3-5mm) were evaluated using VSM. A measurement result is shown in Table 9.

[0275]

[Table 9]

[0276] Next, the raw material alloy which has the same presentation as sample No.13 of Table 8 was prepared, and the quenching alloy was produced using strip cast equipment as shown in drawing 3 . Weighing capacity of B, Fe, Ti, Nd, and C of 99.5% or more of purity was specifically carried out so that a total amount might be set to 10kg, and it supplied to dissolver. Then, these alloy raw materials were dissolved in Ar ambient atmosphere of pressure 30kPa by high-frequency heating, and the alloy molten metal was produced. After molten metal temperature reached 1350 degrees C, the molten metal was passed to the chute. The molten metal flowed the chute top smoothly and was cooled by the cooling roller. Surface peripheral velocity of a cooling roller was carried out in 12m/second.

[0277] In this way, the obtained quenching alloy (average thickness: about 80 micrometers) was held for 6 - 8 minutes in [heat-treatment-temperature] 740 degrees C in Ar ambient atmosphere, and it cooled to the room temperature after that. Then, the magnetic properties of a quenching alloy were evaluated using VSM.

[0278] For the residual magnetic flux density Br, 0.79T and coercive force HcJ were [1090 kA/m and maximum MAG energy-product (BH) max of the measurement result] 102 kJ/m³. It turns out that the almost equivalent property was acquired as compared with the magnetic properties of sample No.8 which show these magnetic properties in Table 9.

[0279] Next, the rate (the rate p of an atomic ratio) that C occupies to the sum total of (B+C) measured [0.25 or less sample and p] XRD and a demagnetization curve about the sample exceeding 0.25.

[0280] Drawing 11 shows the XRD pattern before heat treatment of Nd₉Fe₇₃B_{12.6}C_{1.4}Ti₄ (example: p= 0.1) and Nd₉Fe₇₃B₇C₇Ti₄ (the example of a comparison: p= 0.5). These samples were produced like the example which mentioned all above, although presentations differed. In addition, drawing 12 shows the demagnetization curve of Nd₉Fe₇₃B_{12.6}C_{1.4}Ti₄ (example) and Nd₉Fe₇₃B₇C₇Ti₄ (example of a comparison).

[0281] When the ratio p of C amounts to 0.5 exceeding 0.25, as shown in drawing 11 , the diffraction peak of Ti-C is observed notably. Thus, if there is too much C, since many Ti-C phases deposit in a quenching alloy, the rate of a configuration phase ratio after heat treatment shifts from the request range, and as shown in drawing 12 , the square shape nature of a demagnetization curve worsens. Such a problem was not produced when the rate (the rate p of an atomic ratio) that C occupies to the sum total of (B+C) was 0.25 or less.

[0282] (Example 3) In this example, the strip cast equipment shown in drawing 3 was used.

[0283] First, weighing capacity was carried out so that it might have the presentation of Nd₉Fe₇₃B_{12.6}C_{1.4}Ti₃Nb₁ at the rate of an atomic ratio, and a total amount might be set to 5kg using the metal of B, C, Fe, Nb, Ti, and Nd of 99.5% or more of purity. These metals were

invested in the crucible made from an alumina, and it dissolved by high-frequency heating in the argon atmosphere of pressure 35kPa. The melting temperature was made into 1350 degrees C. [0284] Crucible was ****(ed) after the dissolution, the molten metal was supplied on the chute made from porous ceramics, and it led to the front face of a cooling roller. The skin temperature of a chute was held at 600 degrees C at the heater. Moreover, it received horizontally and only 20 degrees (= include angle alpha) of chutes were leaned so that a molten metal might flow smoothly toward a roll on a chute. Moreover, the molten metal has arranged the chute so that it may flow into the location which inclined toward the location of crucible only 40 degrees (= include angle beta) from the right above section of a roll. In addition, as the chute in this example is shown in drawing 4 , it has the molten metal guide for dividing into two articles the flow of the molten metal received from crucible, and supplying a roll.

[0285] The cooling roller was rotated with 14m [/second] surface peripheral velocity. By adjusting the tilt angle of crucible, the speed of supply of the molten metal which flows a chute top was adjusted so that it might become a part for 1.5kg/per flow of a molten metal. In this example, surface center line granularity Ra used the roll made from a pure copper which is 5 micrometers. The rise of roll temperature was prevented with water cooling inside a roll.

[0286] When the characteristic X ray of CuKalpha investigated the organization of the obtained quenching alloy, it checked that he was the quenching alloy organization where Fe₂₃ B₆ and alpha-Fe are intermingled with the diffraction peak of Nd₂Fe₁₄B.

[0287] Drawing 13 shows the powder XRD of the obtained quenching alloy, and drawing 14 shows the demagnetization curve of the quenching alloy measured using the oscillatory type magnetometer. In drawing 13 and drawing 14 , the curve indicated to be "as-cast" is related with a quenching alloy.

[0288] Next, the power mill ground the quenching alloy. Then, it ****(ed) by argon gas and heat-treated by supplying quenching alloy powder in the hoop belt type continuation heat treating furnace which held whenever [furnace temperature] at 740 degrees C. At this time, the powder supply rate was held to a part for 30g/.

[0289] Powder XRD and the demagnetization curve after heat treatment are also shown in drawing 13 and drawing 14 , respectively. The data after heat treatment are shown in drawing 13 and drawing 14 by the curve indicated to be "as-annealed." The magnetic properties after heat treatment are shown in the following table 10.

[0290]

[Table 10]

[0291] As shown in drawing 14 and Table 10, the iron machine permanent magnet in this example demonstrated good magnetic properties.

[0292] Next, the detailed metal texture after heat treatment was observed with the transmission electron microscope (TEM). Consequently, that the about 10nm fine crystal grain exists in the grain boundary turned out to be crystal grain with a mean particle diameter of about 40nm at the in-house after heat treatment. Moreover, as a result of the metal texture analysis by HRTEM (high resolving transmission electron microscope), crystal grain with a mean particle diameter of about 40nm is Nd₂Fe₁₄B, and it checked that Fe₂₃ B₆ or the iron machine boride of Fe₃B existed in the grain boundary.

[0293] (Example 4) Also by this example, the strip cast equipment shown in drawing 3 was used.

[0294] First, weighing capacity was carried out so that it might have the presentation of Nd₉Fe₇₃B_{12.6}C_{1.4}Ti₃Nb₁ at the rate of an atomic ratio, and a total amount might be set to 5kg using the metal of B, C, Fe, Nb, Ti, and Nd of 99.5% or more of purity. These metals were invested in the crucible made from an alumina, and it dissolved by high-frequency heating in the argon atmosphere of pressure 35kPa. The melting temperature was made into 1350 degrees C.

[0295] Crucible was ****(ed) after the dissolution, the molten metal was supplied on the chute made from porous ceramics, and it led to the front face of a cooling roller. The skin temperature of a chute was held at 600 degrees C at the heater. Moreover, it received horizontally and only 20 degrees (= include angle alpha) of chutes were leaned so that a molten metal might flow smoothly toward a roll on a chute. Moreover, the molten metal has arranged the chute so that it may flow into the location which inclined toward the location of crucible only 40 degrees (= include angle beta) from the right above section of a roll. The chute shown in drawing 4 was used also by this example.

[0296] At this example, the cooling roller was rotated with the surface peripheral velocity shown in Table 11. Moreover, by adjusting the tilt angle of crucible, the speed of supply (per flow) of the molten metal which flows a chute top was adjusted, as shown in Table 11. The width of face of one flow of a molten metal investigated the effect which roll peripheral velocity and a molten metal speed of supply have on quenching as 10mm.

[0297] In addition, this example as well as an example 3 used the roll made from a pure copper whose surface center line granularity Ra is 5 micrometers. The rise of roll temperature was prevented with water cooling inside a roll.

[0298]

[Table 11]

[0299] In Table 11, "O" shows the case where it was stabilized and a quenching alloy is able to be produced. On the other hand, a splash occurs and "x" shows the case where it was stabilized and the quenching alloy which has a desired organization is not able to be obtained. "***" shows the case where a splash occurs intermittently, although production of the stable quenching alloy was often observed.

[0300] Table 11 shows that quenching by which the molten metal speed of supply per [which is one] molten metal flow was stabilized above below by 2.0kg/by 1.0kg/is realized, when roll surface peripheral velocity is 10m/second or more 18m/second or less. A quenching alloy thin band becomes thin, and becomes easy to generate a splash, so that roll surface peripheral velocity becomes quick.

[0301] Although the molten metal speed of supply per flow of a molten metal does not influence the thickness of a quenching alloy thin band so much, it changes the width of face of a quenching alloy thin band. The width of face of a quenching alloy thin band becomes large, so that a molten metal speed of supply is large.

[0302] The thickness of a quenching alloy thin band changes depending on roll surface peripheral velocity. That is, a quenching alloy thin band becomes thin, so that roll surface peripheral velocity is quick. For example, when roll surface peripheral velocity is 10m/second, the average thickness of a quenching alloy thin band is about 100 micrometers, and when roll surface peripheral velocity is 22m/second, the average thickness of a quenching alloy thin band is about 45-80 micrometers.

[0303] The powder particle of the configuration near a homaxial configuration is easy to be obtained by grinding a quenching alloy, so that the thickness of a quenching alloy thin band is thick, as mentioned above (for example, when it has the thickness exceeding 80 micrometers). If a particle with the aspect ratio near 1 produces a bond magnet using the powder contained, the bond magnet excellent in the magnet property can be obtained. [many]

[0304] In addition, the characteristic X ray of CuKalpha investigated the organization of the quenching alloy produced the condition for surface peripheral-velocity [of a roll / of 14m/second], and molten metal amount-of-supply/of 1.3kg per flow of a molten metal. Consequently, it checked that he was the quenching alloy organization where Fe₂₃ B₆ and alpha-Fe are intermingled with the diffraction peak of Nd₂Fe₁₄B.

[0305]

[Effect of the Invention] According to this invention, the raw material alloy for iron machine rare earth magnets which demonstrates coercive force and outstanding magnetic properties with magnetization high enough can be mass-produced by performing quenching of the rare earth alloy molten metal which added Ti into the raw material alloy using the strip cast method, reducing the amount of rare earth elements required for a magnet.

*** NOTICES ***

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.*** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] It is drawing showing the example of a configuration of the strip cast equipment suitably used by this invention.

[Drawing 2] It is drawing showing the organization of the nano composite magnet manufactured by this invention.

[Drawing 3] It is drawing showing other examples of a configuration of the strip cast equipment suitably used by this invention.

[Drawing 4] It is the perspective view showing the chute (guidance means) of an alloy molten

metal used with strip cast equipment.

[Drawing 5] Center line granularity Ra in the front face of the cooling roller used for the strip cast method is drawing showing the effect which it has on quenching of an alloy molten metal.

[Drawing 6] Center line granularity Ra in the front face of the cooling roller used for a melt spinning process is drawing showing the effect which it has on quenching of an alloy molten metal.

[Drawing 7] It is the sectional view showing the organization of the quenching alloy formed by the strip cast method, and (a) shows the cross section of the R-T-B system alloy which added Ti, and (b) shows the cross section of the conventional R-T-B system alloy which does not add Ti.

[Drawing 8] It is the graph which shows DTA of sample No.2 and sample No.6.

[Drawing 9] It is the graph which shows DTA of sample No.8 and sample No.14.

[Drawing 10] It is the graph which shows the powder X diffraction data of sample No.8 before heat-of-crystallization processing (as-cast), and sample No.14.

[Drawing 11] The XRD pattern before heat treatment of Nd₉Fe₇₃B_{12.6}C_{1.4}Ti₄ (example: p= 0.1) and Nd₉Fe₇₃B₇C₇Ti₄ (the example of a comparison: p= 0.5) is shown.

[Drawing 12] The demagnetization curve of Nd₉Fe₇₃B_{12.6}C_{1.4}Ti₄ (example) and Nd₉Fe₇₃B₇C₇Ti₄ (example of a comparison) is shown.

[Drawing 13] It is the graph of the powder XRD about the example of this invention. The curve indicated to be "as-cast" is related with the alloy after the curve indicated to be "as-annealed" heat-treating about a quenching alloy.

[Drawing 14] It is the graph of the demagnetization curve about the example of this invention measured using the oscillatory type magnetometer. The curve indicated to be "as-cast" is related with the alloy after the curve indicated to be "as-annealed" heat-treating about a quenching alloy.

[Drawing 15] It is the graph which shows the heating mass rate of increase of the nano composite magnetic powder by this invention, and the conventional quenching magnet powder.

[Drawing 16] It is the graph which shows the consistency of the bond magnet Plastic solid formed using the nano composite magnetic powder with which particle size distributions differ.

[Drawing 17] It is the decomposition perspective view showing typically the configuration of the stepping motor 100 equipped with the permanent magnet rotator mold of the operation gestalt by this invention.

[Drawing 18] (a) - (d) is drawing really [of the operation gestalt by this invention / bond magnet] showing Rota 200 of a die, and its forming cycle.

[Drawing 19] It is the mimetic diagram showing the structure of magnet laying-under-the-ground mold Rota 300 of the operation gestalt by this invention.

[Drawing 20] (a) And (b) is drawing showing typically the structure of the rotary encoder 411 of the operation gestalt by this invention.

[Drawing 21] (a) And (b) is the sectional view showing typically the structure of the process cartridge 501 equipped with the magnetic roll 507 of the operation gestalt by this invention for electrophotography.

[Description of Notations]

1 Fusion Furnace

2 Pars-Basilaris-Ossis-Occipitalis Outlet of Fusion Furnace

3 Alloy Molten Metal

4 **

5 Chute (Guidance Means of Molten Metal)

6 Paddle of Alloy Molten Metal

7 Cooling Roller
8 Quenching Alloy

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 特 許 公 報 (B 1)

(11) 特許番号

特許第3297676号

(P3297676)

(45) 発行日 平成14年7月2日(2002.7.2)

(24) 登録日 平成14年4月12日(2002.4.12)

(51) Int. Cl. ⁷	識別記号	P I
B 2 2 D 11/06	3 6 0	B 2 2 D 11/06 3 6 0 B
C 2 1 D 6/00		C 2 1 D 6/00 B
C 2 2 C 38/00	3 0 3	C 2 2 C 38/00 3 0 3 D

請求項の数19(全 38 頁)

(21) 出願番号	特願2001-342692(P2001-342692)	(73) 特許権者	000183417 住友特殊金属株式会社 大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番19号
(22) 出願日	平成13年11月8日(2001.11.8)	(72) 発明者	金清 裕和 大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号 住友特殊金属株式会社 山崎製作所内
審査請求日	平成13年11月9日(2001.11.9)	(72) 発明者	三次 敏夫 大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号 住友特殊金属株式会社 山崎製作所内
(31) 優先権主張番号	特願2000-344567(P2000-344567)	(72) 発明者	広沢 哲 大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号 住友特殊金属株式会社 山崎製作所内
(32) 優先日	平成12年11月13日(2000.11.13)	(74) 代理人	100101683 弁理士 奥田 誠司
(33) 優先権主張国	日本 (J P)	審査官	田中 則光
(31) 優先権主張番号	特願2000-352306(P2000-352306)		
(32) 優先日	平成12年11月20日(2000.11.20)		
(33) 優先権主張国	日本 (J P)		
(31) 優先権主張番号	特願2001-54252(P2001-54252)		
(32) 優先日	平成13年2月28日(2001.2.28)		
(33) 優先権主張国	日本 (J P)		
(31) 優先権主張番号	特願2001-271414(P2001-271414)		
(32) 優先日	平成13年9月7日(2001.9.7)		
(33) 優先権主張国	日本 (J P)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ナノコンポジット磁石およびその製造方法

1

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】 組成式が $(Fe_{1-x}T_n)$

$100-x-y-z-m-n$ $(B_{1-y}Co)_zR,Ti,M_n$ (TはCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素、RはY(イットリウム)および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の元素)で表現され、組成比

率(原子比率) x 、 y 、 z 、 m 、 n および p が、それ

ぞれ、

$1.0 < x \leq 2.5$ 原子%、

$7 \leq y < 1.0$ 原子%、

$0.5 \leq z \leq 1.2$ 原子%、

$0 \leq m \leq 0.5$ 、

2

$0 \leq n \leq 1.0$ 原子%、および

$0 \leq p \leq 0.25$ 、

を満足する鉄基希土類原料合金の溶湯を用意する工程と、

前記合金の溶湯を、案内面が水平方向に対して1~80°の角度を形成する案内手段上に供給し、冷却ロールとの接触領域に前記合金溶湯を移動させる工程と、

前記合金溶湯を前記冷却ロールによって急冷し、 $R_2Fe_{1-x}B$ 型化合物相を含む急冷合金を作製する冷却工程と、

を包含し、

前記急冷合金の作製は、圧力0.13kPa以上100kPa以下に調節されている雰囲気ガス中において行う、鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

【請求項2】 組成式が $(Fe_{1-x}T_n)$

$100-x-y-z-m-n$ ($B_{1-x}C_x$), R, Ti, M_n (TはCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素, RはY(イットリウム)および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素, Mは, Al, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, およびPbからなる群から選択された1種以上の元素)で表現され, 組成比率(原子比率) x, y, z, m, n , および p が, それぞれ,

$1.0 < x \leq 2.5$ 原子%,

$7 \leq y < 1.0$ 原子%,

$0.5 \leq z \leq 1.2$ 原子%,

$0 \leq m \leq 0.5$,

$0 \leq n \leq 1.0$ 原子%, および

$0 \leq p \leq 0.25$,

を満足する鉄基希土類原料合金の溶湯を用意する工程と,

前記合金の溶湯を、案内面が水平方向に対して1~80°の角度を形成する案内手段上に供給し、冷却ロールとの接触領域に前記合金溶湯を移動させる工程と,

前記合金溶湯を前記冷却ロールによって急冷し、 R_2Fe_{11} B型化合物相を含む急冷合金を作製する冷却工程と,

を包含し、

前記冷却工程において、前記 R_2Fe_{11} B型化合物相の存在比率を前記急冷合金の60体積%以上にする、鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

【請求項3】 前記冷却工程において、前記冷却ロール表面の回転周速度を5m/秒以上26m/秒以下の範囲に調節し、前記合金溶湯の単位幅あたりの供給速度を3kg/分/cm以下とする請求項2に記載の鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

【請求項4】 組成式が($Fe_{1-x}T_x$)

$100-x-y-z-m-n$ ($B_{1-x}C_x$), R, Ti, M_n (TはCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素, RはY(イットリウム)および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素, Mは, Al, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, およびPbからなる群から選択された1種以上の元素)で表現され, 組成比率(原子比率) x, y, z, m, n , および p が, それぞれ,

$1.0 < x \leq 2.5$ 原子%,

$7 \leq y < 1.0$ 原子%,

$0.5 \leq z \leq 1.2$ 原子%,

$0 \leq m \leq 0.5$,

$0 \leq n \leq 1.0$ 原子%, および

$0 \leq p \leq 0.25$,

を満足する鉄基希土類原料合金の溶湯を用意する工程

と,

前記合金の溶湯を、案内面が水平方向に対して1~80°の角度を形成する案内手段上に供給し、冷却ロールとの接触領域に前記合金溶湯を移動させる工程と,

前記合金溶湯を前記冷却ロールによって急冷し、 R_2Fe_{11} B型化合物相を含む急冷合金を作製する冷却工程と,

を包含し、

10 少なくとも R_2Fe_{11} B型化合物相、 α -Fe相、および強磁性鉄基硼化物相を含む3種類以上の結晶相を含む組織を形成し、前記 R_2Fe_{11} B型化合物相の平均結晶粒径を20nm以上200nm以下、前記 α -Fe相および硼化物相の平均結晶粒径を1nm以上50nm以下とする工程を包含する、鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

【請求項5】 組成式が($Fe_{1-x}T_x$)

$100-x-y-z-m-n$ ($B_{1-x}C_x$), R, Ti, M_n (TはCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素, RはY(イットリウム)および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素, Mは, Al, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, およびPbからなる群から選択された1種以上の元素)で表現され, 組成比率(原子比率) x, y, z, m, n , および p が, それぞれ,

$1.0 < x \leq 2.5$ 原子%,

$7 \leq y < 1.0$ 原子%,

$0.5 \leq z \leq 1.2$ 原子%,

$0 \leq m \leq 0.5$,

30 $0 \leq n \leq 1.0$ 原子%, および

$0 \leq p \leq 0.25$,

を満足する鉄基希土類原料合金の溶湯を用意する工程と,

前記合金の溶湯を、案内面が水平方向に対して1~80°の角度を形成する案内手段上に供給し、冷却ロールとの接触領域に前記合金溶湯を移動させる工程と,

前記合金溶湯を前記冷却ロールによって急冷し、 R_2Fe_{11} B型化合物相を含む急冷合金を作製する冷却工程と,

40 を包含し、

強磁性鉄基硼化物相が前記急冷合金における R_2Fe_{11} B型化合物相の粒界または亜粒界に存在している、鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

【請求項6】 前記急冷合金に対して結晶化熱処理を行うことにより、前記組織を形成する請求項4に記載の鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

【請求項7】 前記結晶化熱処理は前記急冷合金を550℃以上850℃以下の温度で30秒以上保持することを含む請求項6に記載の鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

【請求項8】 前記結晶化熱処理の前に前記急冷合金を粉砕する工程を含む請求項7に記載の鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

【請求項9】 前記鉄基硼化物相は、 Fe_2B および/または Fe_{12}B_3 を含んでいる請求項4または5に記載の鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

【請求項10】 組成式が $(\text{Fe}_{1-x}\text{T}_x)_{100-x-y-z-n}(\text{B}_{1-z}\text{C}_z)_x\text{R}_y\text{T}_1\text{M}_n$ (TはCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素、RはY(イットリウム)および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の元素)で表現され、組成比率(原子比

率) x 、 y 、 z 、 m 、 n 、および p が、それぞれ、

$1.0 < x \leq 2.5$ 原子%、

$7 \leq y < 1.0$ 原子%、

$0.5 \leq z \leq 1.2$ 原子%、

$0 \leq m \leq 0.5$ 、

$0 \leq n \leq 1.0$ 原子%、および

$0 \leq p \leq 0.25$ 、

を満足する鉄基希土類原料合金の溶湯を用意する工程と、

前記合金の溶湯を、案内面が水平方向に対して1～80°の角度を形成する案内手段上に供給し、冷却ロールとの接触領域に前記合金溶湯を移動させる工程と、

前記合金溶湯を前記冷却ロールによって急冷し、 $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相を含む急冷合金を作製する冷却工程と、

を包含し、

前記組成式中のCの組成比率 p が0、 $0.1 \leq p \leq 0.25$ の関係を満足している、鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

【請求項11】 前記合金溶湯の凝固過程で最初に析出する化合物相の凝固温度が、前記組成比率 p がゼロの場合に比べて、5℃以上低下していることを特徴とする請求項10に記載の鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

【請求項12】 前記冷却工程において、前記合金溶湯の凝固過程で最初に析出する化合物相は調化チタン系化合物である請求項11に記載の鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

【請求項13】 組成式が $(\text{Fe}_{1-x}\text{T}_x)_{100-x-y-z-n}(\text{B}_{1-z}\text{C}_z)_x\text{R}_y\text{T}_1\text{M}_n$ (TはCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素、RはY(イットリウム)および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の元素)で表現され、組成比率(原子比

率) x 、 y 、 z 、 m 、 n 、および p が、それぞれ、

$1.0 < x \leq 2.5$ 原子%、

$7 \leq y < 1.0$ 原子%、

$0.5 \leq z \leq 1.2$ 原子%、

$0 \leq m \leq 0.5$ 、

$0 \leq n \leq 1.0$ 原子%、および

$0 \leq p \leq 0.25$ 、

を満足する鉄基希土類原料合金の溶湯を用意する工程と、

前記合金の溶湯を、案内面が水平方向に対して1～80°の角度を形成する案内手段上に供給し、冷却ロールとの接触領域に前記合金溶湯を移動させる工程と、

前記合金溶湯を前記冷却ロールによって急冷し、 $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相を含む急冷合金を作製する冷却工程と、

を包含し、

前記冷却工程は、表面の中心線粗さ R_a が20μm以下の冷却ロールを10m/秒以上の表面周速度で回転させて行う、鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

【請求項14】 組成式が $(\text{Fe}_{1-x}\text{T}_x)_{100-x-y-z-n}(\text{B}_{1-z}\text{C}_z)_x\text{R}_y\text{T}_1\text{M}_n$ (TはCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素、RはY(イットリウム)および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の元素)で表現され、組成比率(原子比

率) x 、 y 、 z 、 m 、 n 、および p が、それぞれ、

$1.0 < x \leq 2.5$ 原子%、

$7 \leq y < 1.0$ 原子%、

$0.5 \leq z \leq 1.2$ 原子%、

$0 \leq m \leq 0.5$ 、

$0 \leq n \leq 1.0$ 原子%、および

$0 \leq p \leq 0.25$ 、

を満足する鉄基希土類原料合金の溶湯を用意する工程と、

前記合金の溶湯を、案内面が水平方向に対して1～80°の角度を形成する案内手段上に供給し、冷却ロールとの接触領域に前記合金溶湯を移動させる工程と、

前記合金溶湯を前記冷却ロールによって急冷し、 $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相を含む急冷合金を作製する冷却工程と、

を包含し、

前記冷却工程において、

前記冷却ロールによって急冷される前記合金溶湯の1つの流れあたりの溶湯急冷処理速度を、0.7kg/分以上4kg/分未満の範囲内に調節する、鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

【請求項15】 組成式が $(\text{Fe}_{1-x}\text{T}_x)_{100-x-y-z-n}(\text{B}_{1-z}\text{C}_z)_x\text{R}_y\text{T}_1\text{M}_n$ (TはCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素、RはY(イットリ

10

20

30

40

50

7

ウム) および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の元素) で表現され、組成比率(原子比率) x 、 y 、 z 、 m 、 n 、および p が、それぞれ、
 $1.0 < x \leq 2.5$ 原子%、
 $7 \leq y < 1.0$ 原子%、
 $0.5 \leq z \leq 1.2$ 原子%、
 $0 \leq m \leq 0.5$ 、
 $0 \leq n \leq 1.0$ 原子%、および
 $0 \leq p \leq 0.25$ 、
 を満足する鉄基希土類原料合金の溶湯を用意する工程と、
 前記合金の溶湯を、案内面が水平方向に対して1〜80°の角度を形成する案内手段上に供給し、冷却ロールとの接触領域に前記合金溶湯を移動させる工程と、
 前記合金溶湯を前記冷却ロールによって急冷し、 $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相を含む急冷合金を作製する冷却工程と、
 を包含し、
 前記合金溶湯の動粘度を $5 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{秒}$ 以下に調節する、鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。
 【請求項16】 組成式が $(Fe_{1-x}T_x)_{100-x-y-z-n}$
 $(B_{1-y}C_y)_xR_nT_1M_n$ (TはCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素、RはY(イットリウム) および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の元素) で表現され、組成比率(原子比率) x 、 y 、 z 、 m 、 n 、および p が、それぞれ、
 $1.0 < x \leq 2.5$ 原子%、
 $7 \leq y < 1.0$ 原子%、
 $0.5 \leq z \leq 1.2$ 原子%、
 $0 \leq m \leq 0.5$ 、
 $0 \leq n \leq 1.0$ 原子%、および
 $0 \leq p \leq 0.25$ 、
 を満足する鉄基希土類原料合金の溶湯を用意する工程と、
 前記合金の溶湯を、案内面が水平方向に対して1〜80°の角度を形成する案内手段上に供給し、冷却ロールとの接触領域に前記合金溶湯を移動させる工程と、
 前記合金溶湯を前記冷却ロールによって急冷し、 $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相を含む急冷合金を作製する冷却工程と、
 を包含し、
 前記合金溶湯の動粘度が $5 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{秒}$ を超えないように前記案内手段の表面温度を300℃以上に保持する、鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。

8

【請求項17】 組成式が $(Fe_{1-x}T_x)_{100-x-y-z-n}$
 $(B_{1-y}C_y)_xR_nT_1M_n$ (TはCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素、RはY(イットリウム) および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の元素) で表現され、組成比率(原子比率) x 、 y 、 z 、 m 、 n 、および p が、それぞれ、
 $1.0 < x \leq 2.5$ 原子%、
 $7 \leq y < 1.0$ 原子%、
 $0.5 \leq z \leq 1.2$ 原子%、
 $0 \leq m \leq 0.5$ 、
 $0 \leq n \leq 1.0$ 原子%、および
 $0 \leq p \leq 0.25$ 、
 を満足する鉄基希土類原料合金の溶湯を用意する工程と、
 前記合金の溶湯を、案内面が水平方向に対して1〜80°の角度を形成する案内手段上に供給し、冷却ロールとの接触領域に前記合金溶湯を移動させる工程と、
 前記合金溶湯を前記冷却ロールによって急冷し、 $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相を含む急冷合金を作製する冷却工程と、
 を包含し、
 前記案内手段はAl₂O₃を80体積%以上含む材料から構成されている、鉄基希土類磁石原料合金の製造方法。
 【請求項18】 請求項1から17のいずれかに記載の製造方法によって作製された鉄基希土類磁石原料合金を用意する工程と、
 前記鉄基希土類磁石原料合金に対する熱処理を行う工程と、
 を包含する鉄基永久磁石の製造方法。
 【請求項19】 請求項1から17のいずれかに記載の製造方法によって作製された鉄基希土類磁石原料合金の粉末、または請求項18に記載の製造方法によって作製された鉄基永久磁石の粉末を用意する工程と、
 前記粉末を用いてボンド磁石を作製する工程とを包含するボンド磁石の製造方法。
 【発明の詳細な説明】
 【0001】
 【発明の属する技術分野】本発明は、各種モータやアクチュエータに好適に使用される永久磁石の製造方法に関し、特に複数の強磁性相を有する鉄基希土類合金磁石およびその製造方法に関する。
 【0002】
 【従来の技術】近年、家電用機器、OA機器、および電装品等において、より一層の高性能化と小型軽量化が要求されている。そのため、これらの機器に使用される永久磁石については、磁気回路全体としての性能対重量比を最大にすることが求められており、例えば残留磁束密

度 B_r が0.5 T (テスラ)以上の永久磁石を用いることが要求されている。しかし、従来の比較的安価なハードフェライト磁石によっては、残留磁束密度 B_r を0.5 T以上にすることはできない。

【0003】現在、0.5 T以上の高い残留磁束密度 B_r を有する永久磁石としては、粉末冶金法によって作製されるSm-Co系磁石が知られている。Sm-Co系磁石以外では、粉末冶金法によって作製されるNd-Fe-B系焼結磁石や、液体急冷法によって作製されるNd-Fe-B系急冷磁石が高い残留磁束密度 B_r を発揮することができる。前者のNd-Fe-B系焼結磁石は、例えば特開昭59-46008号公報に開示されており、後者のNd-Fe-B系急冷磁石は例えば特開昭60-9852号公報に開示されている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、Sm-Co系磁石は、原料となるSmおよびCoのいずれもが高価であるため、磁石価額が高いという欠点を有している。

【0005】Nd-Fe-B系磁石の場合は、安価なFeを主成分として(全体の60重量%~70重量%程度)含むため、Sm-Co系磁石に比べて安価ではあるが、その製造工程に要する費用が高いという問題がある。製造工程費用が高い理由のひとつは、含有量が全体の10原子%~15原子%程度を占めるNdの分離精製や還元反応に大規模な設備と多大な工程が必要になることである。また、粉末冶金法による場合は、どうしても製造工程数が多くなる。

【0006】これに対し、液体急冷法によって製造されるNd-Fe-B系急冷磁石は、溶解工程→液体冷却工程→熱処理工程といった比較的簡単な工程で得られるため、粉末冶金法によるNd-Fe-B系磁石に比べて工程費用が安いという利点がある。しかし、液体急冷法による場合、バルク状の永久磁石を得るには、急冷合金から作製した磁石粉末を樹脂と混ぜ、ボンド磁石を形成する必要があるため、成形されたボンド磁石に占める磁石粉末の充填率(体積比率)は高々80%程度である。また、液体急冷法によって作製した急冷合金は、磁氣的に等方性である。

【0007】以上の理由から、液体急冷法を用いて製造したNd-Fe-B系急冷磁石は、粉末冶金法によって製造した異方性のNd-Fe-B系焼結磁石に比べて B_r が低いという問題を有している。

【0008】Nd-Fe-B系急冷磁石の特性を改善する手法としては、特開平1-7502号公報に記載されているように、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、およびWからなる群から選択された少なくとも一種の元素と、Ti、V、およびCrからなる群から選択された少なくとも一種の元素とを複合的に添加することが有効である。このような元素の添加によって、保磁力 H_{c2} と耐食

性とが向上するが、残留磁束密度 B_r を改善する有効な方法は、ボンド磁石の密度を向上すること以外に知られていない。また、Nd-Fe-B系急冷磁石中に6原子%以上の希土類元素が含まれる場合、多くの先行技術によれば、溶湯の急冷速度を高めるため、ノズルを介して冷却ロールに溶湯を噴射するメルトスピニング法が使用されている。

【0009】Nd-Fe-B系急冷磁石の場合、希土類元素の濃度が比較的に低い組成、すなわち、Nd₇₀Fe₂₅B₅(原子%)の近傍組成を持ち、Fe₂B型化合物を主相とする磁石材料が提案されている(R. Coehoorn等、J. de Phys. C8,1998,669~670頁)。この永久磁石材料は、液体急冷法によって作製したアモルファス合金に対して結晶化熱処理を施すことにより、軟磁性であるFe₂B相および硬磁性であるNd₂Fe₁₄B相が混在する微細結晶集合体から形成された準安定構造を有しており、「ナノコンポジット磁石」と称されている。このようなナノコンポジット磁石については、1 T以上の高い残留磁束密度 B_r を有することが報告されているが、その保磁力 H_{c2} は160 kA/m~240 kA/mと比較的低い。そのため、この永久磁石材料の使用は、磁石の動作点が1以上になる用途に限られている。

【0010】また、ナノコンポジット磁石の原料合金に種々の金属元素を添加し、磁気特性を向上させる試みがなされているが(特開平3-261104号公報、特許第2727505号公報、特許第2727506号公報、国際出願の国際公開公報W O 003/03403、W.C.Chan, et.al, "THE EFFECTS OF REFRACTORY METALS ON THE MAGNETIC PROPERTIES OF α -Fe/ α -Fe₂B-TYPE NANOCOMPOSITES", IEEE, Trans. Magn., No. 5, INTERMAG.99, Kyongju, Korea pp.3265-3267, 1999)、必ずしも充分な「コスト当りの特性値」は得られていない。これは、ナノコンポジット磁石において実用に耐えられる大きさの保磁力が得られていないため、実使用において充分な磁気特性を発現できないためである。

【0011】本発明は、上記事情に鑑みてなされたものであり、その目的とするところは、残留磁束密度 $B_r \geq 0.8$ Tを維持しながら、実用に耐えられる高い保磁力(例えば $H_{c2} \geq 600$ kA/m)を満足する優れた磁気特性を持つ鉄基合金磁石を安価に製造し得る永久磁石の製造方法を提供することにある。

【0012】

【課題を解決するための手段】本発明による鉄基希土類磁石原料合金の製造方法は、組成式が $(Fe_{100-x-y-z-t-u-v-w}, B_{10-x-y-z-t-u-v-w}, R, Ti, M, (T \text{ は } Co \text{ および } Ni \text{ からなる群から選択された1種以上の元素}, R \text{ は } Y \text{ (イットリウム) および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素}, M \text{ は } Al, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, \text{ および } Pb \text{ からなる$

群から選択された1種以上の元素)で表現され、組成比率(原子比率) x 、 y 、 z 、 m 、 n 、および p が、それぞれ、 $1.0 < x \leq 2.5$ 原子%、 $7 \leq y < 10$ 原子%、 $0.5 \leq z \leq 1.2$ 原子%、 $0 \leq m \leq 0.5$ 、 $0 \leq n \leq 1.0$ 原子%、および $0 \leq p \leq 0.25$ を満足する鉄基希土類原料合金の溶湯を用意する工程と、前記合金の溶湯を、案内面が水平方向に対して $1 \sim 80^\circ$ の角度を形成する案内手段上に供給し、前記冷却ロールとの接触領域に前記合金溶湯を移動させる工程と、前記合金溶湯を前記冷却ロールによって急冷し、 $R_2Fe_{1-x}B_x$ 型化合物相を含む急冷合金を作製する冷却工程とを包含する。

【0013】好ましい実施形態において、前記冷却工程は、前記案内手段により、前記合金溶湯の流れの幅を前記冷却ロールの軸線方向に沿って所定の大きさに調節する工程を包含する。

【0014】好ましい実施形態において、前記急冷合金の作製は減圧雰囲気ガス中で行う。

【0015】好ましい実施形態において、前記雰囲気ガスの圧力は、圧力 0.13 kPa 以上 100 kPa 以下に調節されている。

【0016】好ましい実施形態では、前記冷却工程において、前記 $R_2Fe_{1-x}B_x$ 型化合物相の存在比率を前記急冷合金の 60 体積%以上にする。

【0017】好ましい実施形態では、前記冷却工程において、前記冷却ロール表面の回転周速度を 5 m/秒 以上 26 m/秒 以下の範囲に調節し、前記合金溶湯の単位幅あたりの供給速度を 3 kg/分/cm 以下とする。

【0018】好ましい実施形態では、少なくとも $R_2Fe_{1-x}B_x$ 型化合物相、 $\alpha\text{-Fe}$ 相、および強磁性鉄基調化物相を含む3種類以上の結晶相を含有する組織を形成し、前記 $R_2Fe_{1-x}B_x$ 型化合物相の平均結晶粒径を 20 nm 以上 200 nm 以下、前記 $\alpha\text{-Fe}$ 相および調化物相の平均結晶粒径を 1 nm 以上 50 nm 以下とする工程を包含する。

【0019】好ましい実施形態において、強磁性鉄基調化物相が $R_2Fe_{1-x}B_x$ 型化合物相の粒界または亜粒界に存在している。

【0020】好ましい実施形態では、前記急冷合金に対して結晶化熱処理を行なうことにより、前記組織を形成する。

【0021】好ましい実施形態では、前記結晶化熱処理は前記急冷合金を 550°C 以上 850°C 以下の温度で 30 秒以上保持することを含む。

【0022】好ましい実施形態において、前記結晶化熱処理の前に前記急冷合金を粉砕する工程を含む。

【0023】好ましい実施形態において、前記鉄基調化物は、 Fe_2B および/または Fe_3B を含んでいる。

【0024】好ましい実施形態において、前記元素 M は Nb を必ず含む。

【0025】好ましい実施形態では、 Nb を実質的に含

まないことを除けば実質的に同一の組成を有する鉄基希土類磁石原料合金と比較して溶湯の液相線温度が 10°C 以上低い。

【0026】好ましい実施形態において、 Nb の含有量は、原子比率で全体の 0.1% 以上 3% 以下である。

【0027】好ましい実施形態において、前記組成式中の C の組成比率 p が 0 、 $0.1 \leq p \leq 0.25$ の関係を満足している。

【0028】好ましい実施形態では、前記案内手段に供給される前の時点における前記合金溶湯の動粘度を $5 \times 10^{-6} (\text{m}^2/\text{秒})$ 以下とする。

【0029】好ましい実施形態では、前記合金溶湯の凝固過程で最初に析出する化合物相の凝固温度が、前記組成比率 p がゼロの場合に比べて、 5°C 以上低下していることを特徴とする。

【0030】好ましい実施形態では、前記冷却工程において、前記合金溶湯の凝固過程で最初に析出する化合物相は酸化チタン系化合物である。

【0031】好ましい実施形態において、前記冷却工程は、表面の中心線粗さ R_a が $20 \mu\text{m}$ 以下の冷却ロールを 10 m/秒 以上の表面周速度で回転させて行う。

【0032】好ましい実施形態では、前記冷却工程において、前記冷却ロールによって急冷される前記合金溶湯の1つの流れあたりの溶湯急冷処理速度を 0.7 kg/分以上 4 kg/分 未満の範囲内に調節する。

【0033】好ましい実施形態では、前記冷却工程において、前記案内手段により、前記合金溶湯の1つの流れの幅を 5 mm 以上 20 mm 未満に調節する。

【0034】好ましい実施形態では、前記合金溶湯の動粘度を $5 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{秒}$ 以下に調節する。

【0035】好ましい実施形態では、前記合金溶湯の動粘度が $5 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{秒}$ を超えないように前記案内手段の表面温度を 300°C 以上に保持する。

【0036】好ましい実施形態では、急冷合金の厚さを $50 \mu\text{m}$ 以上 $200 \mu\text{m}$ 以下にする。

【0037】好ましい実施形態において、前記案内手段は Al_2O_3 を 80 体積%以上含む材料から構成されている。

【0038】好ましい実施形態において、前記冷却ロールは 50 W/m/K 以上の熱伝導率を有する材料から形成されている基材を用いている。

【0039】好ましい実施形態において、前記冷却ロールは炭素鋼、タングステン、鉄、銅、モリブデン、ベリリウム、または銅系の合金から形成された基材を有している。

【0040】好ましい実施形態において、前記冷却ロールの基材の表面には、クロム、ニッケル、または、それらを組み合わせためっきが施されていることを特徴とする。

【0041】本発明による鉄基永久磁石の製造方法は、

上記の製造方法によって作製された急冷合金を用意する工程と、前記急冷合金に対する熱処理を行う工程とを包含する。

【0042】本発明によるボンド磁石の製造方法は、上記いずれかの製造方法によって作製された合金の粉末の粉末を用意する工程と、前記粉末を用いてボンド磁石を作製する工程とを包含する。

【0043】本発明による急冷合金は、組成式が $(\text{Fe}_{1-x-y-z-n}\text{T}_n)_{100-x-y-z-n}\text{Q}_x\text{R}_y\text{Ti}_z\text{M}_n$ (T はCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素、QはBおよびCからなる群から選択された1種以上の元素、Rは希土類金属元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上の元素)で表現され、組成比率(原子比率) x 、 y 、 z 、 m 、および n が、それぞれ、 $10 < x \leq 20$ 原子%、 $6 \leq y < 10$ 原子%、 $0.5 \leq z \leq 6$ 原子%、 $0 \leq m \leq 0.5$ 、および $0 \leq n \leq 5$ 原子%を満足する急冷合金であって、厚さが $50 \mu\text{m}$ 以上 $200 \mu\text{m}$ 以下の範囲内にあり、厚さ方向と直交する2つの端面に結晶組織が形成されていることを特徴とする。

【0044】好ましい実施形態において、前記結晶組織は、平均粒径が 1 nm 以上 50 nm 以下の強磁性化合物相と、平均粒径 20 nm 以上 200 nm 以下の $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相とを含んでいる。

【0045】好ましい実施形態では、前記両端面における結晶組織に挟まれた領域に非晶質部分が存在する。

【0046】好ましい実施形態において、厚さは $80 \mu\text{m}$ 以上である。

【0047】本発明による急冷合金は、組成式が $(\text{Fe}_{1-x-y-z-n}\text{T}_n)_{100-x-y-z-n}\text{Q}_x\text{R}_y\text{Ti}_z\text{M}_n$ (T はCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素、QはBおよびCからなる群から選択された1種以上の元素、Rは希土類金属元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上の元素)で表現され、組成比率 x 、 y 、 z 、 m 、および n が、それぞれ、 $10 < x \leq 20$ 原子%、 $6 \leq y < 10$ 原子%、 $0.5 \leq z \leq 6$ 原子%、 $0 \leq m \leq 0.5$ 、および $0 \leq n \leq 5$ 原子%、を満足する急冷合金であって、厚さが $60 \mu\text{m}$ 以上 $150 \mu\text{m}$ 以下の範囲内にあり、リコイル選別率が1.1以上2以下である。

【0048】本発明による磁粉は、組成式が $(\text{Fe}_{1-x-y-z-n}\text{T}_n)_{100-x-y-z-n}\text{Q}_x\text{R}_y\text{Ti}_z\text{M}_n$ (T はCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素、QはBおよびCからなる群から選択された1種以上の元素、Rは希土類金属元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上の元素)で表現され、組成比率 x 、 y 、 z 、 m 、およ

び n が、それぞれ、 $10 < x \leq 20$ 原子%、 $6 \leq y < 10$ 原子%、 $0.5 \leq z \leq 6$ 原子%、 $0 \leq m \leq 0.5$ 、および $0 \leq n \leq 5$ 原子%を満足する磁粉であって、平均粒径が $60 \mu\text{m}$ 以上 $110 \mu\text{m}$ 以下、短軸サイズに対する長軸サイズの比率が0.3以上1以下、保磁力 H_{ci} が 600 kA/m 以上である。

【0049】

【発明の実施の形態】本発明による永久磁石の製造方法は、ストリップキャスト法により、Fe、B、R (Yを含む1種以上の希土類金属元素)、およびTiを含む鉄基合金溶湯を減圧雰囲気中で冷却し、それによって微細な $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相を含む急冷合金を作製する。そして、その後に必要なに応じて急冷合金に対する熱処理を行ない、急冷合金中に残存していた非晶質を結晶化させる。

【0050】ストリップキャスト法は、冷却ロールの表面に合金溶湯を接触させ、合金溶湯を冷却することにより、急冷合金の薄帯を作製する方法である。本発明では、従来のストリップキャスト法に比べて高速で回転する冷却ロールによって合金溶湯の急冷・凝固を行う。ストリップキャスト法は、ノズルオリフィスを用いて合金溶湯を冷却ロールの表面に噴射するメルトスピニング法に比べて、冷却速度は低い、幅が広くて比較的厚い急冷合金薄帯を作製できるため、生産性に優れている。

【0051】本発明によれば、急冷合金中に軟磁性の $\alpha\text{-Fe}$ をほとんど析出させず、微細な $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相を有する結晶組織、あるいは、微細な $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相を有する組織とアモルファス相が混在した組織が作製される。これにより、 $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相の粗大化を抑制し、熱処理後であっても、その平均粒径を 20 nm 以上 150 nm 以下とし、かつ、 $\alpha\text{-Fe}$ 相などの軟磁性相が微細に分散した高性能の複合型永久磁石を得ることができる。また、微細な軟磁性相は、 $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相の粒界または亜粒界に存在し、構成相の間で交換相互作用が強められる。

【0052】従来、本発明が対象とするような組成に類似する組成(すなわち、本発明の組成からTiを除いた組成)を有する合金溶湯を冷却して $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相を多く含む急冷合金を作製しようとする、 $\alpha\text{-Fe}$ が多く析出した合金組織が得られる。このため、その後の結晶化熱処理で $\alpha\text{-Fe}$ が粗大化してしまうという問題があった。 $\alpha\text{-Fe}$ などの軟磁性相が粗大化すると、磁石特性が大きく劣化し、到底実用に耐える永久磁石は得られない。

【0053】特に本発明で用いる原料合金組成のようにホウ素の含有量が比較的多く、希土類元素Rが比較的小さい(10 原子%以下)場合、従来技術によれば、合金溶湯の冷却速度を十分に低下させて $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相の体積比率が 60% を超えるような急冷凝固合金を作製しようとする、 $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相以外に α

γ -Fe またはその前駆体が多く析出してしまい、その後の結晶化熱処理により、 α -Fe 相の粗大化が進行し、磁石特性が大きく劣化してしまった。

【0054】以上のことから、従来、ナノコンポジット磁石の保磁力を増大させるには、メルトスピニング法を用いて合金溶湯の冷却速度を高め、急冷凝固合金の大部分がアモルファス相によって占められるような状態にした後、そのアモルファス相から結晶化熱処理により均一に微細化された組織を形成することが好ましいとの常識が存在していた。これは、微細な結晶相が分散した合金組織を持つナノコンポジット磁石を得るには、制御しやすい熱処理工程でアモルファス相から結晶化を行なうべきと考えられていたからである。

【0055】このため、アモルファス生成能に優れたLaを原料合金に添加し、その原料合金の溶湯を急冷することによってアモルファス相を主相とする急冷凝固合金を作製した後、結晶化熱処理で $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相および α -Fe相の両方を析出・成長させ、いずれの相も数十nm程度の微細なものとする技術が報告されている(W. C. Chan, et al., "THE EFFECTS OF REFRACTORY METALS ON THE MAGNETIC PROPERTIES OF α -Fe/ $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -TYPE NANOCOMPOSITES", IEEE, Trans. Magn. No. 5, INTERMAG, 99, Kyongju, Korea pp.3265-3267, 1999)。なお、この論文は、Tiなどの高融点金属元素の微量添加(2at%)が磁石特性を向上させることと、希土類元素であるNdの組成比率を9.5at%よりも11.0at%に増加させることが $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相および α -Fe相の両方を微細化する上で好ましいことを教示している。上記高融点金属の添加は、硼化物($\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}_2$ や Fe_3B)の生成を抑制し、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相および α -Fe相の2相のみからなる磁石を作製するために行なわれている。

【0056】上記のナノコンポジット磁石用の急冷合金は、ノズルを用いて合金溶湯を高速で回転する冷却ロールの表面に噴射するメルトスピニング法で作製される。メルトスピニング法による場合、極めて速い冷却速度が得られるため、非晶質の急冷合金を作製するのに適している。

【0057】これに対し、本発明では、ストリップキャスト法を用いて、従来のメルトスピニング法における冷却速度よりも速い速度で合金溶湯を冷却するが、添加元素Tiの働きにより、急冷凝固工程で γ -Fe(後で α -Fe相に変化する)の析出を抑え、更には、結晶化熱処理工程における α -Fe相などの軟磁性相の粗大化を抑制している。その結果、微細な $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相が均一に分散した急冷合金を作製することができる。

【0058】本発明によれば、希土類元素量が比較的小さい(10at%未満)原料合金を用いながら、磁化(残留磁束密度)および保磁力が高く、減磁曲線の角形性にも優れた永久磁石を量産レベルで製造することがで

きる。

【0059】本発明による保磁力の増加は、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相を冷却工程で優先的に析出・成長させ、それによって $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の体積比率を増加させながら、しかし軟磁性相の粗大化を抑制したことによって実現する。磁化の増加は、Tiの働きにより、急冷凝固合金中に存在するホウ素リッチな非磁性アモルファス相から強磁性鉄基硼化物などの硼化物相を生成し、結晶化熱処理後に残存する非磁性アモルファス相の体積比率を減少させたために得られたものと考えられる。

【0060】以下、本発明の鉄基希土類合金磁石をより詳細に説明する。

【0061】まず、組成式が $(\text{Fe}_{1-x}\text{T}_x)_{100-x-1-y-z-m-n}(\text{B}_{1-y}\text{C}_y)_m\text{R}_n\text{Ti}_m\text{M}_n$ で表現される鉄基希土類原料合金の溶湯を用意する。ここで、TはCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素、RはY(イットリウム)および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の元素である。また、組成比率(原子比率)x、y、z、m、n、およびpは、それぞれ、以下の関係式を満足する。

【0062】 $1.0 < x \leq 2.5$ 原子%

$7 \leq y < 1.0$ 原子%

$0.5 \leq z \leq 1.2$ 原子%

$0 \leq m \leq 0.5$

$0 \leq n \leq 1.0$ 原子%および

$0 \leq p \leq 0.25$

【0063】次に、ストリップキャスト法により、上記の合金溶湯を減圧雰囲気ガス中にて急冷し、微細な(例えば平均粒径が150nm以下の) $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相を体積比率で60%以上含む急冷合金を作製する冷却工程を行なう。

【0064】その後、必要に応じて、急冷合金に対する結晶化熱処理を行ない、 $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相および強磁性の鉄基硼化物相を含むナノコンポジット組織を形成する。軟磁性相としては、鉄基硼化物の他に、微細な α -Fe相を含んでいても良い。このような組織中、 $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相の平均結晶粒径は20nm以上200nm以下、硼化物相および α -Fe相の平均結晶粒径は1nm以上50nm以下となるように合金溶湯の冷却条件および結晶化熱処理条件が調節される。

【0065】本発明によれば、添加したTiの働きにより、合金溶湯の冷却工程で $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相を多く優先的に生成することができる。

【0066】最終的な磁石における $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相の平均結晶粒径は、鉄基硼化物相や α -Fe相の平均結晶粒径よりも大きい。硬磁性相である $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相の平均サイズが比較的大きく、 α -Fe相な

10

20

30

40

50

どの軟磁性相の平均サイズが十分に小さいとき、各構成相が交換相互作用によって効率的に結合し、軟磁性相の磁化方向が硬磁性相によって拘束されるので、合金全体としては優れた減磁曲線の角形性を示すことが可能になる。

【0067】本発明では、合金組成、合金の冷却速度、および熱処理温度などの製造条件を調節することにより、 $R_2Fe_{11}B$ 型化合物相の飽和磁化と同等または、それよりも高い飽和磁化を有する鉄基硼化物や $\alpha-Fe$ を生成することが可能になる。生成される鉄基硼化物は、例えば、 Fe_3B （飽和磁化1.5 T）や $Fe_{23}B_6$ （飽和磁化1.6 T）である。ここで、 $R_2Fe_{11}B$ の飽和磁化は、 R がNdの場合に約1.6 Tであり、 $\alpha-Fe$ の飽和磁化は2.1 Tである。

【0068】本発明の製造方法による場合、上記のような強磁性の鉄基硼化物が生成されやすい理由は、 $R_2Fe_{11}B$ 型化合物相が大半を占める凝固合金を作製すると、急冷合金中に存在するアモルファス相がどうしてもホウ素を過剰に含むこととなるため、この余分なホウ素が結晶化熱処理で他の元素と結合して析出・成長しやすくなるためであると考えられる。しかし、熱処理前のアモルファス相に含まれるホウ素と他の元素が結合して、磁化の低い化合物が生成されると、磁石全体として磁化が低下してしまう。なお、本明細書における「アモルファス相」とは、原子配列が完全に無秩序化した部分によってのみ構成される相だけではなく、結晶化の前駆体や微結晶（サイズ：数nm以下）、または原子クラスターを部分的に含んでいる相をも含むものとする。具体的には、X線回折や透過電子顕微鏡観察によって結晶構造を明確に同定できない相を広く「アモルファス相」と称することにする。そして、X線回折や透過電子顕微鏡観察によって結晶構造を明確に同定できる構造を「結晶相」と称することとする。

【0069】本発明者の実験によれば、Tiを添加した場合だけ、V、Cr、Mn、Nb、Moなどの他の種類の金属を添加した場合と異なり、磁化の低下が生じず、むしろ磁化が向上することがわかった。また、Tiを添加した場合、前述の他の添加元素と比べ、減磁曲線の角形性が特に良好なものとなった。これらのことから、磁化の低い硼化物の生成を抑制する上でTiが特に重要な働きをしていると考えられる。特に、本発明で用いる原料合金の組成範囲のうち、ホウ素およびTiが比較的に少ない場合は、熱処理によって強磁性を有する鉄基硼化物相が析出しやすい。この場合、非磁性のアモルファス相中に含まれるホウ素が鉄基硼化物中に取り込まれる結果、結晶化熱処理後に残存する非磁性アモルファス相の体積比率が減少し、強磁性の結晶相が増加するため、残留磁束密度 B_r が向上する。

【0070】また、Tiを添加した場合は、 $\alpha-Fe$ の粒成長が抑制され、優れた硬磁特性が発揮される。そ

いて、 $R_2Fe_{11}B$ 相や $\alpha-Fe$ 相以外の強磁性相を生成し、それによって、合金内に3種類以上の強磁性相を含む組織を形成することが可能になる。Tiに代えて、Nb、V、Crなどの金属元素を添加した場合は、 $\alpha-Fe$ 相が析出するような比較的高い温度領域で $\alpha-Fe$ 相の粒成長が著しく進行し、 $\alpha-Fe$ 相の磁化方向が硬磁性相との交換結合によって有効に拘束されなくなる結果、減磁曲線の角形性が大きく低下する。

【0071】なお、Tiに代えて、Nb、Mo、Wを添加した場合、 $\alpha-Fe$ が析出しない比較的低い温度領域で熱処理を行えば、減磁曲線の角形性に優れた良好な硬磁特性を得ることが可能である。しかし、このような温度で熱処理を行なった合金では、 $R_2Fe_{11}B$ 型微細結晶相が非磁性のアモルファス相中に分散して存在していると推定され、ナノコンポジット磁石の構成は形成されていない。また、更に高い温度で熱処理を行なうと、アモルファス相中から $\alpha-Fe$ 相が析出してしまふ。この $\alpha-Fe$ 相は、Tiを添加した場合と異なり、析出後、急激に成長し、粗大化する。このため、 $\alpha-Fe$ 相の磁化方向が硬磁性相との交換結合によって有効に拘束されなくなり、減磁曲線の角形性が大きく劣化してしまうことになる。

【0072】一方、Tiに代えて、VやCrを添加した場合は、これらの添加金属がFeに固溶し、反強磁性的に結合するため、磁化が大きく低下してしまう。

【0073】一方、Tiを添加した場合は、 $\alpha-Fe$ 相の析出・成長のキネティクス（kinetics）が遅くなり、析出・成長に時間を要するため、 $\alpha-Fe$ 相の析出・成長が完了する前に $Nd_2Fe_{11}B$ 相の析出・成長が開始すると考えられる。このため、 $\alpha-Fe$ 相が粗大化する前に $Nd_2Fe_{11}B$ 相が均一に分散した状態で大きく成長する。

【0074】このようにTiを添加した場合のみ、 $\alpha-Fe$ 相の粗大化を適切に抑制し、強磁性の鉄基硼化物を形成することが可能になる。更に、Tiは、液体急冷時にFe初晶（後に $\alpha-Fe$ に変態する $\gamma-Fe$ ）の晶出を遅らせ、過冷却液体の生成を容易にする元素としてホウ素や炭素とともに重要な働きをするため、合金溶湯を急冷する際の冷却速度を10°C/秒～100°C/秒程度の比較的低い値にしても、粗大な $\alpha-Fe$ を析出させることなく、 $R_2Fe_{11}B$ 型結晶相を60体積%以上含む急冷合金（ $R_2Fe_{11}B$ 型結晶相以外には鉄基硼化物を含むことがある）を作製することが可能になる。

【0075】本発明では、ノズルオリフィスによる溶湯の流量制御を行わずに溶湯をシュート（案内手段）から直接に冷却ロール上へ注ぐストリップキャスト法を用いる。このため、ノズルオリフィスを用いるメルトスピニング法による場合と比較して、生産性が高く、製造コストが低い。このようにR-Fe-B系希土類合金の溶湯をストリップキャスト法によっても達成可能な冷却速

度範囲でアモルファス化するには、通常、B（ホウ素）を10原子%以上添加する必要がある。このようにBを多く添加した場合は、急冷合金に対して結晶化熱処理を行った後も、B濃度の高い非磁性のアモルファス相が金属組織中に残存し、均質な微細結晶組織が得られない。その結果、強磁性相の体積比率が低下し、磁化の低下を招来する。しかしながら、本発明のようにTiを添加すると、上述した現象が観察されるため、磁化の高い鉄基調化物が生成され、予想外に磁化が向上する。

【0076】〔組成の限定理由〕BおよびCの合計の組成比率xが10原子%以下になると、急冷時の冷却速度が10⁴°C/秒～10⁵°C/秒程度と比較的遅い場合、R、Fe、B型結晶相とアモルファス相とが混在する急冷合金を作製することが困難になり、その後に熱処理を施しても高い保磁力が得られない。また、組成比率xが10原子%以下になると、高い磁化を示す鉄基調化物が生成されなくなる。鉄基調化物中のホウ素はTiと結合して安定な化合物を作るため、鉄基調化物が多いほど、耐磁性が向上する。このため、xは10原子%を超えることが必要である。一方、組成比率xが25原子%を超えると、結晶化熱処理後も残存するアモルファス相の体積比率が増し、同時に、構成相中で最も高い飽和磁化を有する α -Feの存在比率が減少するため、残留磁束密度B_rが低下してしまう。以上のことから、組成比率xは10原子%を超え、25原子%以下となるように設定することが好ましい。より好ましい組成比率xの範囲は10原子%を超え、17原子%以下である。

【0077】BおよびCの全体に対するCの比率pは、原子比で、0以上0.25以下の範囲にあることが好ましい。C添加の効果を得るには、Cの比率pが0.01以上であることが好ましい。pが0.01よりも少なすぎると、C添加の効果はほとんど得られない。一方、pが0.25よりも大きくなりすぎると、 α -Fe相の生成量が増大して、磁気特性が劣化するという問題が生じる。比率pの下限は、0.02であることが好ましく、pの上限は0.20以下であることが好ましい。比率pは0.08以上0.15以下であることが更に好ましい。

【0078】Rは、希土類元素（Yを含む）の群から選択された1種以上の元素である。LaまたはCeが存在すると、R、Fe、B相のR（典型的にはNd）がLaやCeで置換され、保磁力および角形性が劣化するため、LaおよびCeを実質的に含まないことが好ましい。ただし、微量のLaやCe（0.5原子%以下）が不可避的に混入する不純物として存在する場合、磁気特性上、問題はない。従って、0.5原子%以下のLaやCeを含有する場合は、LaやCeを実質的に含まないといえる。

【0079】Rは、より具体的には、PrまたはNdを必須元素として含むことが好ましく、その必須元素の一

部をDyおよび/またはTbで置換してもよい。Rの組成比率yが全体の6原子%未満になると、保磁力の発現に必要なR、Fe、B型結晶構造を有する化合物相が十分に析出せず、高い保磁力H_{c2}を得ることができなくなる。また、Rの組成比率yが10原子%以上になると、強磁性を有する鉄基調化物の存在量が低下し、代わりにBリッチの非磁性層の存在量が増加するため、ナノコンポジット構造が形成されず、磁化が低下する。故に、希土類元素Rの組成比率yは6原子%以上10原子%未満の範囲、例えば、6原子%以上9.5原子%以下に調節することが好ましい。より好ましいRの範囲は7原子%以上9.3原子%以下であり、最も好ましいRの範囲は8.3原子%以上9.0原子%以下である。

【0080】Tiの添加は、合金溶湯の急冷中に強磁性相を軟磁性相よりも早くに析出・成長させるという効果を発揮するとともに、保磁力H_{c2}および残留磁束密度B_rの向上および減磁曲線の角形性の改善に寄与し、最大エネルギー積(BH)_{max}を向上させる。

【0081】Tiの組成比率zが全体の0.5原子%未満になると、Ti添加の効果が充分に発現しない。一方、Tiの組成比率zが全体の12原子%を超えると、結晶化熱処理後も残存するアモルファス相の体積比率が増すため、残留磁束密度B_rの低下を招来しやすい。以上のことから、Tiの組成比率zは0.5原子%以上12原子%以下の範囲とすることが好ましい。より好ましいzの範囲の下限は1.0原子%であり、より好ましいzの範囲の上限は6原子%である。更に好ましいzの範囲の上限は5原子%である。

【0082】また、Cおよび/またはBから構成されるQの組成比率xが高いほど、Q（例えば硼素）を過剰に含むアモルファス相が形成されやすいので、Tiの組成比率zを高くすることが好ましい。TiはBに対する親和性が強く、強磁性相の粒界に濃縮される。Bに対するTiの比率が高すぎると、Tiは粒界ではなく、R、Fe、B化合物中に入り込み、磁化を低下させる可能性がある。また、Bに対するTiの比率が低すぎると、被磁性のBリッチアモルファス相が多く生成されてしまう。実験によれば、0.05 ≤ z/x ≤ 0.4を満足させるように組成比率を調節することが好ましく、0.1 ≤ z/x ≤ 0.35を満足させることがより好ましい。更に好ましくは0.13 ≤ z/x ≤ 0.3である。

【0083】種々の効果を得る為、金属元素Mを添加しても良い。Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された1種以上の元素である。

【0084】Feは、上述の元素の含有残余を占めるが、Feの一部をCoおよびNiの1種または二種の遷移金属元素（T）で置換しても所望の強磁性特性を得ることができる。Feに対するTの置換量が50%を超え

10

20

30

40

50

ると、 $0.7T$ 以上の高い凝固線密度 B_1 が得られない。このため、置換量は 0% 以上 50% 以下の範囲に限定することが好ましい。なお、 Fe の一部を Co で置換することによって、減磁曲線の角形性が向上するとともに、 $R_2Fe_{1-x}B_x$ 相のキュリー温度が上昇するため、耐熱性が向上する。 Co による Fe 置換量の好ましい範囲は 0.5% 以上 40% 以下である。

【0085】次に、図面を参照しながら、本発明の好ましい実施形態を詳細に説明する。

【0086】（実施形態1）まず、本発明の第1の実施形態を説明する。

【0087】本実施形態では、図1に示すストリップキャスト装置を用いて急冷凝固合金を製造する。酸化しやすい希土類元素 R や Fe を含む原料合金の酸化を防ぐため、不活性ガス雰囲気中で急冷合金の作製を実行する。不活性ガスとしては、ヘリウムまたはアルゴン等の希ガスや窒素を用いることができる。なお、窒素は希土類元素 R と比較的に反応しやすいため、ヘリウムまたはアルゴンなどの希ガスを用いることが好ましい。

【0088】図1のストリップキャスト装置は、内部を不活性ガス雰囲気での減圧状態にすることができる不図示のチャンバ内に配置される。このストリップキャスト装置は、合金原料を溶解するための溶解炉1と、溶解炉1の底部出口2から供給される合金溶湯3を急冷・凝固させるための冷却ロール7と、溶解炉1から冷却ロール7に溶湯3を導く樋4およびシュート（案内手段）5と、凝固して冷却ロール7から薄帯状の合金8を剥離しやすくするスクレパーガス噴出器9とを備えている。

【0089】溶解炉1は、合金原料を溶融することによって作製した溶湯3をシュート5に対して略一定の供給量で供給することができる。この供給量は、溶解炉1を傾ける動作を制御することなどによって、任意に調節することができる。なお、樋4は、必須ではなく、溶解炉1から出た合金溶湯3を直接シュート5に供給しても良い。

【0090】冷却ロール7は、その外周面が銅などの熱伝導性の良好な材料から形成されており、例えば、直径 $30\text{ cm} \sim 100\text{ cm}$ で幅が $15\text{ cm} \sim 100\text{ cm}$ の寸法を有する。冷却ロール7は、不図示の駆動装置によって所定の回転速度で回転することができる。この回転速度を制御することによって、冷却ロール7の周速度を任意に調節することができる。このストリップキャスト装置による冷却速度は、冷却ロール7の回転速度などを選択することにより、約 $10^4\text{ }^\circ\text{C}/\text{秒} \sim 10^5\text{ }^\circ\text{C}/\text{秒}$ の範囲で制御可能である。

【0091】シュート5の溶湯を案内する面は、水平方向に対して角度（傾斜角度） α で傾斜し、シュート5の先端部と冷却ロールの表面との距離は数 mm 以下に保たれる。そして、シュート5は、その先端部と冷却ロール

7の中心とを結ぶ線が水平方向に対して角度 β （ $0^\circ \leq \beta \leq 90^\circ$ ）を形成するように配置される。シュート5の傾斜角度 α は、 $1^\circ \leq \alpha \leq 80^\circ$ であることが好ましく、 $5^\circ \leq \alpha \leq 60^\circ$ の関係を満足することが更に好ましい。角度 β は、 $10^\circ \leq \beta \leq 55^\circ$ の関係を満足することが好ましい。

【0092】シュート5上に供給された溶湯3は、シュート5の先端部から冷却ロール7の表面に対して供給され、冷却ロール7の表面に溶湯のパドル6を形成する。

【0093】シュート5は、溶解炉1から所定の流量で連続的に供給される溶湯3を一時的に貯湯するようにして流速を遅延し、溶湯3の流れを整流することができる。シュート5に供給された溶湯3における溶湯表面部の流れを選択的に堰き止めることができる堰き止め板を設ければ、整流効果を更に向上させることができる。シュート5を用いることによって、冷却ロール7の軸長方向（軸線方向：紙面に垂直）において、一定幅にわたって略均一な厚さに広げた状態で、溶湯3を供給することができる。シュート5の溶湯案内面の傾斜角度 α を調節することにより、溶湯供給速度を微調整できる。溶湯は、その自重により、シュート5の傾斜した案内面を流れ、水平方向（ X 軸方向）に平行な運動量成分をもつ。シュート5の傾斜角度 α を大きくするほど、溶湯の流速は速くなり、運動量も大きくなる。

【0094】シュート5は、上記の機能に加え、冷却ロール7に達する直前の溶湯3の温度を調整する機能をも有する。シュート5上における溶湯3の温度は、液相線温度よりも 100°C 以上高い温度であることが望ましい。溶湯3の温度が低すぎると、急冷後の合金特性に悪影響を及ぼす T_iB_2 などの初晶が局所的に核発生し、これが凝固後に残存してしまうことがあるからである。また、溶湯温度が低すぎると、溶湯粘度が上昇し、スプラッシュが発生しやすくなる。シュート5上での溶湯温度は、溶解炉1からシュート5に注ぎ込む時点での溶湯温度やシュート5自体の熱容量などを調節することによって制御することができるが、必要に応じてシュート加熱装置（図1において不図示）を設けても良い。

【0095】本実施形態におけるシュート5は、冷却ロール7の外周面に対向するように配置された端部において、冷却ロールの軸線方向に沿って所定の間隔だけ離して設けられた複数の排出部を有している。この排出部の幅（溶湯の1つの流れの幅）は、好適には $0.5\text{ cm} \sim 10.0\text{ cm}$ に設定され、より好適には $0.7\text{ cm} \sim 4.0\text{ cm}$ に設定される。本実施形態では、排出部における各溶湯流れの幅は 1 cm に設定されている。なお、溶湯の流れの幅は、上記排出部の位置から離れるにつれ、横方向に広がる傾向がある。シュート5に複数の排出部を設け、複数の溶湯流れを形成する場合は、隣接する溶湯流れが相互に接触しないようにすることが好ましい。

【0096】シュート5上に供給された溶湯3は、冷却ロール7の軸線方向に沿って、各排出部の幅と略同一幅を有して冷却ロール7と接触する。その後、冷却ロール7に所定の出湯幅で接触した溶湯3は、冷却ロール7の回転に伴って（冷却ロール7に引き上げられるようにして）ロール周面上を移動し、この移動過程において冷却される。なお、溶湯漏れを防止するために、シュート5の先端部と冷却ロール7との間の距離は、3mm以下（特に0.4～0.7mmの範囲）に設定されることが好ましい。

【0097】隣接する排出部間の間隙は、好適には1cm～10cmに設定される。このようにして冷却ロール7の外周面における溶湯接触部（溶湯冷却部）を複数の箇所に分離すれば、各排出部から排出された溶湯を効果的に冷却することができる。結果として、シュート5への溶湯供給量を増加させた場合にも所望の冷却速度を実現することができる。

【0098】なお、シュート5の形態は、上記形態に限られず、単一の排出部を有するものであってもよいし、出湯幅がより大きく設定されていてもよい。

【0099】回転する冷却ロール7の外周面上で凝固された合金溶湯3は、薄帯状の凝固合金8となって冷却ロール7から剥離する。本実施形態の場合、複数の排出部の各々から流れ出た溶湯が所定幅の帯となり、凝固する。剥離した凝固合金8は、不図示の回収装置において破碎され、回収される。

【0100】このように、ストリップキャスト法は、メルトスピニング法のようにノズルを用いておらず、ノズル径による噴射スピードの制約やノズル部での凝固による溶湯詰まりなどの問題がないので、大量生産に適している。また、ノズル部の加熱設備や溶湯ヘッド圧を制御する為の圧力制御機構も必要でないため、初期設備投資やランニングコストを小さく抑えることができる。

【0101】また、メルトスピニング法では、ノズル部分の再利用が不可能なため、加工コストの高いノズルを使い捨てにしなければならなかったが、ストリップキャスト法ではシュートを繰り返し使用することが可能であるのでランニングコストが安価である。

【0102】更に、ストリップキャスト法によれば、メルトスピニング法に比べ、遅い速度で冷却ロールを回転させ、また、合金出湯量を多くできるため、急冷合金薄帯を厚くすることができる。

【0103】しかしながら、ストリップキャスト法では合金溶湯を冷却ロールの表面に強く噴射しないため、冷却ロール7が10m/秒以上の比較的速い周速度で回転するような場合は、冷却ロール7の表面に溶湯のバドル6を安定して形成するのが難しいという問題がある。また、ノズルを用いない場合、合金溶湯がロール表面を押す圧力が小さいため、合金溶湯とロール表面との接触部において合金溶湯とロール表面との間に微小な隙間が生

じやすい。このため、合金溶湯とロール表面との間の密着性は、ストリップキャスト法がメルトスピニング法に比べて劣る。密着性に関する問題およびその解決方法については、後述する。

【0104】本実施形態では、溶湯供給速度（処理量）の上限値を、溶湯と冷却ロールとの間の単位接触幅あたりの供給速度で規定している。ストリップキャスト法による場合、溶湯は冷却ロールの軸線方向に沿って所定の接触幅を有するように冷却ロールと接触するため、溶湯の冷却条件が単位接触幅あたりの溶湯供給速度に大きく依存する。

【0105】溶湯供給速度が速すぎると、冷却ロールによる溶湯の冷却速度が低下し、その結果、非晶質化が促進せずに結晶化組織を多く含む急冷合金が作製されてしまいナノコンポジット磁石に適した原料合金を得ることができなくなってしまう。このため、本発明では、単位接触幅（cm）あたりの供給速度（kg/分）を3kg/分/cm以下に設定している。

【0106】また、前述のように、例えば接触幅約2cm×3本の接触形態で溶湯を冷却ロールに接触させる場合、供給速度を約0.5kg/分/cm以上に設定することによって、約3kg/分以上の処理量を実現することができる。

【0107】このように、上記特定範囲の周速度で回転する冷却ロールに対して上記特定範囲の供給速度で溶湯を供給することによって、ストリップキャスト法を用いた場合にも所望の急冷合金を生産性高く作製することができる。ストリップキャスト法では、ジェットキャスト法のように製造コストを著しく増加させるノズルを使用しないので、ノズルにかかるコストが不必要となり、また、ノズルの閉塞事故によって生産が停止することもない。

【0108】本実施形態においては、冷却ロールの周速度を5m/秒以上20m/秒未満に設定することができる。ロール周速度が5m/秒未満であると、冷却能力の不足により所望の急冷合金が得られず、また、20m/秒以上にすると、ロールによって溶湯を引き上げることが難しくなり、冷却合金が薄片状で飛散するため、回収にも困難をきたすおそれがある。最適な周速度は、冷却ロールの構造、材質、溶湯供給速度などによって異なり得るが、周速度が速いと、得られる薄帯状合金は極端に薄くなって高張るため、取り扱いにくくなる。また、周速度が速すぎると、薄帯状合金を粉碎して作製した磁粉の形状が扁平になるため、磁粉を成形する際、磁粉の流動性やキャビティ充填率が低下する。その結果、磁石の磁粉密度が低下し、磁石特性が劣化してしまう。一方、周速度が遅いと、十分な冷却速度を得ることが困難になる。これらのことから、冷却ロールの周速度は、好ましくは5m/秒以上20m/秒以下に設定され、より好ましくは6m/秒以上15m/秒以下に設定される。冷却

ロールの周速度の更に好ましい範囲は、10 m/秒以上13 m/秒以下である。

【0109】なお、単位接触幅あたりの供給速度が3 kg/分/cmを超えると、所定の冷却速度が得られず、所望の急冷合金を作製することが困難になる。単位接触幅あたりの供給速度の適切な範囲は、ロール周速度、ロール構造などに応じて異なり得るが、2 kg/分/cm以下であることが好ましく、1.5 kg/分/cm以下であることが更に好ましい。

【0110】また、装置全体としての溶湯供給速度（処理速度）は、3 kg/分未満では生産性が悪く、安価な原料供給を実現できないため、3 kg/分以上にしている。このためには、シュートや冷却ロールの形状などを適切に選択した場合において単位接触幅あたりの供給速度を、0.4 kg/分/cm以上にすることが好ましい。

【0111】例えば直径約35 cmで幅約15 cmのCu製ロールを用いた場合、ロール周速度が5 m/秒～10 m/秒であれば、単位接触幅あたりの供給速度は、0.5 kg/分/cm～2 kg/分/cm程度が好ましい。この場合、0.5 kg/分～6 kg/分の供給速度で急冷工程を行うことができる。

【0112】シュート5の形状や、溶湯排出部の幅と本数、溶湯供給速度などを適切に選択することによって、得られる薄帯状急冷合金の厚さ（平均値）及び幅が適正範囲内に調節できる。薄帯状急冷合金の幅は、15 mm～80 mmの範囲であることが好ましい。また、薄帯状合金の厚さは、薄すぎると高密度が低くなるので回収困難となり、厚すぎると溶湯のロール接触面と自由面（溶湯表面）とで冷却速度が異なり、自由面の冷却速度が十分に得られないため好ましくない。このため、薄帯状合金の厚さが50 μm以上250 μm以下となるようにすることが好ましく、60 μm以上200 μm以下となるようにすることがより好ましい。急冷合金の厚さの更に好ましい範囲は、70 μm以上90 μm以下である。また、ボンド磁石の充填密度を考慮すると、急冷合金の厚さは80 μmを超えることが好ましい。

【0113】〔熱処理〕本実施形態では、熱処理をアルゴン雰囲気中で実行する。好ましくは、昇温速度を5℃/秒～20℃/秒として、550℃以上850℃以下の温度で30秒以上20分以下の時間保持した後、室温まで冷却する。この熱処理によって、残存アモルファス相中に準安定相の微細結晶が析出・成長し、ナノコンポジット組織構造が形成される。本発明によれば、熱処理の開始前の時点（as-cast）で既に微細な $R_2Fe_{1-x}B$ 結晶相（ $Nd_2Fe_{1-x}B$ 型結晶相）が全体の60体積%以上存在しているため、 $\alpha-Fe$ 相や他の結晶相の粗大化が抑制され、 $Nd_2Fe_{1-x}B$ 型結晶相以外の各構成相（軟磁性相）が均一に微細化される。熱処理後における $R_2Fe_{1-x}B$ 結晶相（ $Nd_2Fe_{1-x}B$ 型結晶相）が合

金中に占める体積比率は65～85%である。

【0114】なお、熱処理温度が550℃を下回ると、熱処理後もアモルファス相が多く残存し、急冷条件によっては、保磁力が充分なレベルに達しない場合がある。また、熱処理温度が850℃を超えると、各構成相の粒成長が著しく、残留磁束密度 B_r が低下し、減磁曲線の角形性が劣化する。このため、熱処理温度は550℃以上850℃以下が好ましいが、より好ましい熱処理温度の範囲は570℃以上820℃以下である。

【0115】本発明では、急冷合金中に充分な量の $Nd_2Fe_{1-x}B$ 型化合物相が均一かつ微細に析出している。このため、急冷合金に対して敢えて結晶化熱処理を行わない場合でも、急冷凝固合金自体が充分な磁石特性を発揮し得る。そのため、結晶化熱処理は本発明に必須の工程ではないが、これを行なうことが磁石特性向上のためには好ましい。なお、従来に比較して低い温度の熱処理でも充分に磁石特性を向上させることが可能である。

【0116】熱処理雰囲気は、合金の酸化を防止するため、50 kPa以下のArガスや N_2 ガスなどの不活性ガスが好ましい。0.1 kPa以下の真空中で熱処理を行っても良い。

【0117】熱処理前の急冷合金中には、 $R_2Fe_{1-x}B$ 化合物相およびアモルファス相以外に、 Fe_2B 相、 $Fe_{23}B_6$ 、 $R_2Fe_{1-x}B$ 相、および $R_2Fe_{23}B_6$ 相等の準安定相が含まれていても良い。その場合、熱処理によって $R_2Fe_{23}B_6$ 相は消失し、 $R_2Fe_{1-x}B$ 相の飽和磁化と同等、または、それよりも高い飽和磁化を示す鉄基硼化物（例えば $Fe_{23}B_6$ ）や $\alpha-Fe$ を結晶成長させることができる。なお、本明細書における「 Fe_2B 相」は、「 $Fe_{23}B_6$ 相」を含むものとする。

【0118】本発明の場合、最終的に $\alpha-Fe$ のような軟磁性相が存在していても、軟磁性相の平均結晶粒径が硬磁性相の平均結晶粒径よりも小さいため、軟磁性相と硬磁性相とが交換相互作用によって磁気的に結合するため、優れた磁気特性が発揮される。

【0119】熱処理後における $Nd_2Fe_{1-x}B$ 型化合物相の平均結晶粒径は、単軸結晶粒径である300 nm以下となる必要があり、20 nm以上200 nm以下であることが好ましく、20 nm以上150 nm以下であることが更に好ましい。これに対し、強磁性の鉄基硼化物相や $\alpha-Fe$ 相の平均結晶粒径が50 nmを超えると、各構成相間に働く交換相互作用が弱まり、減磁曲線の角形性が劣化するため、 $(BH)_{max}$ が低下してしまう。通常、これらの相は1 nmよりも小さな直径をもつ析出物とはならず、数nmの大きさの析出物となる。以上のことから、硼化物相や $\alpha-Fe$ 相などの軟磁性相の平均結晶粒径は1 nm以上50 nm以下であることが好ましく、5 nm以上30 nm以下であることが更に好ましい。磁気特性上、 $Nd_2Fe_{1-x}B$ 型化合物相の平均結晶粒径が20 nm以上100 nm以下、軟磁性相の平均結

晶粒径が1nm以上30nm以下であることが更に好ましい。また、交換スプリング磁石として優れて性能を発揮するには、Nd₂Fe₁₄B型化合物相の平均結晶粒径は、軟磁性相の平均結晶粒径よりも大きいことが好ましい。

【0120】また、本実施形態によれば、図2に示すように、Nd₂Fe₁₄B型化合物相の粒界または亜粒界に微細な鉄基調化物相（(Fe, Ti)-B化合物）が存在した組織構造が得られる。このような組織は、構成相間の交換相互作用を最大化するのに適している。鉄基調化物中にはTiが存在している。これは、TiのBに対する親和性が強く、Tiが鉄基調化物中に濃縮されやすいためであると考えられる。鉄基調化物内でTiとBが強く結合するため、Tiの添加は鉄基調化物を安定化すると考えられる。

【0121】なお、熱処理前に急冷合金の薄帯を粗く切断または粉砕しておいてもよい。熱処理後、得られた磁石を微粉砕し、磁石粉末（磁粉）を作製すれば、その磁粉から公知の工程によって種々のボンド磁石を製造することができる。ボンド磁石を作製する場合、鉄基希土類合金磁粉はエポキシ樹脂やナイロン樹脂と混合され、所望の形状に成形される。このとき、ナノコンポジット磁粉に他の種類の磁粉、例えばSm-Fe-N系磁粉やハードフェライト磁粉を混合してもよい。

【0122】上述のボンド磁石を用いてモータやアクチュエータなどの各種の回転機を製造することができる。

【0123】本発明の方法により得られた磁石粉末を射出成形ボンド磁石用に用いる場合、平均粒度が200μm以下になるように粉砕することが好ましく、より好ましい粉末の平均粒径は30μm以上150μm以下である。また、圧縮成形ボンド磁石用に用いる場合は、粒度が300μm以下になるように粉砕することが好ましく、より好ましい粉末の平均粒径は30μm以上250μm以下である。更に好ましい範囲は50μm以上200μm以下である。

【0124】（実施形態2）次に、本発明の第2の実施形態を説明する。

【0125】Tiを必須元素として含む上記組成の合金の溶湯をストリップキャスト法で急冷・凝固する場合、TiとBとが結合した化合物（TiB₂など）が溶湯中で形成されやすく、その結果、溶湯の液相線温度が従来の組成を有する鉄基希土類磁石原料合金の溶湯に比べて高くなる。溶湯の液相線温度が高くなると、その分、溶湯温度を高め（液相線温度より例えば100℃程度高温）に設定し、溶湯粘度を十分に低く維持しておかなければ、安定した出湯を實現できなくなる。

【0126】しかし、合金溶湯を冷却ロールの表面で急冷・凝固させる場合に、出湯温度を高くすると、ロール表面温度が上昇するため、急冷合金の薄帯が冷却ロールから剥がれにくくなり、冷却ロールに巻きつきやすくな

る。合金薄帯がロールに巻きつくと、巻きついた合金上に次々と溶湯が供給され、急冷合金中に生成される結晶相が粗大化するため、最終的な磁石特性が劣化してしまうことになる。

【0127】この問題は、比較的少量の合金溶湯をノズルから噴射するメルトスピニング法では、ほとんど生じないものである。メルトスピニング法による場合は、冷却ロールの表面に接触する溶湯の量が少なく、また、強く噴射される溶湯とロール表面との間の密着性もよい。その結果、ロールが溶湯を冷却する能力が低下しにくく、溶湯の冷却が均一かつ充分に進行するからである。

【0128】これに対して、ストリップキャスト法による場合は、ノズルを用いないため、大量の合金溶湯を均一かつ充分に冷却することが難しい。また、本発明で用いる合金組成では、溶湯の冷却速度や冷却の均一性が急冷合金の微細組織を大きく左右し、磁石特性を決定付けてしまう。このため、高性能ナノコンポジット磁石をストリップキャスト法で量産するには、冷却ロールへの合金薄帯の巻きつきを充分に防止する必要がある。

【0129】本発明者は、上述した組成系の合金に対して適量のN₂を添加することによって合金溶湯の液相線温度が10℃以上（例えば約40～80℃）も低下することを見出した。合金溶湯の液相線温度が下がると、その分だけ溶湯温度を低下させたとしても、溶湯粘度はほとんど増加せず、安定した出湯を継続的にこなうことが可能になる。出湯温度が低くなると、冷却ロールの表面で充分な冷却を達成することができるとともに、ロールでの巻きつきを防止するとともに、急冷凝固合金組織を均一微細化することが可能になる。

【0130】そこで、本実施形態では、組成式が(Fe_{1-x}Ti_x)_{100-x-y-z-m-n}(B_{1-y-z-n}C_y)₁₀₀R_xTi_xNb_nで表現される合金の溶湯をストリップキャスト法で急冷する。ここで、TiはCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素、RはY（イットリウム）および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素）で表現され、組成比率x、y、z、m、n、およびpが、それぞれ、以下の関係式を満足する。

【0131】10< x ≤ 25原子%

7 ≤ y < 10原子%

0.5 ≤ z ≤ 12原子%

0 ≤ m ≤ 0.5

0.1 ≤ n ≤ 5原子%、および

0 ≤ p ≤ 0.25

【0132】なお、冷却ロールによる合金の巻きつきを防止するためには、N₂を添加するだけではなく、前述のように雰囲気ガス圧を適切な範囲に調節することが好ましい。

【0133】本実施形態では、図3に示すストリップキャスト装置を用いて急冷凝固合金を製造する。酸化しやすい希土類元素RやFeを含む原料合金の酸化を

防くため、不活性ガス雰囲気中で合金製造工程を実行する。不活性ガスとしては、ヘリウムまたはアルゴン等の希ガスや窒素を用いることができる。

【0134】図3のストリップキャスト装置は、内部を不活性ガス雰囲気中で減圧状態にすることができるチャンバ内に配置される。このストリップキャスト装置は、図1の装置と同様に、合金原料を溶解するための溶解炉1と、溶解炉1から供給される合金溶湯3を急冷・凝固させるための冷却ロール7と、溶解炉1から冷却ロール7に溶湯3を導くシュート（タンディッシュ）5と、凝固して冷却ロール7から薄帯状の合金8を剥離しやすくするスクレパーガス噴出器9とを備えている。

【0135】溶解炉1は、合金原料を熔融することによって作製した溶湯3をシュート5に対して略一定の供給量で供給することができる。この供給量は、溶解炉1を傾ける動作を制御することなどによって、任意に調節することができる。

【0136】冷却ロール7は、その外周面が銅などの熱伝導性の良好な材料から形成されており、直径（2r）が30cm～100cmで幅が15cm～100cmの寸法を有する。冷却ロール7は、不図示の駆動装置によって所定の回転速度で回転することができる。この回転速度を制御することによって、冷却ロール7の周速度を任意に調節することができる。このストリップキャスト装置による冷却速度は、冷却ロール7の回転速度などを選択することにより、約10°C/秒～約2×10°C/秒の範囲で制御可能である。

【0137】シュート5上に供給された溶湯3は、シュートの先端部から冷却ロール7の表面に対して圧力を加えられずに供給され、冷却ロール7の表面に溶湯のパドル6が形成される。

【0138】シュート5は、セラミックス等で構成され、溶解炉1から所定の流量で連続的に供給される溶湯3を一時的に貯湯するようにして流速を遅延し、溶湯3の流れを整流することができる。シュート5に供給された溶湯3における溶湯表面部の流れを選択的に堰き止めることができる堰き止め板を設ければ、整流効果を更に向上させることができる。

【0139】ストリップキャスト工程における種々の条件は、最初の実施形態について説明したことが適用される。また、急冷合金に対して行う後の工程は、第1の実施形態における工程と同様である。

【0140】本実施形態によれば、TiとともにNbを鉄基希土類合金に添加することにより、合金溶湯の液相線温度を下げ、急冷合金を量産レベルで安定して製造することが可能となる。

【0141】なお、Nbの組成比率は、0.1原子%以上5原子%以下であることが好ましく、0.5原子%以上3原子%以下であることが更に好ましい。

【0142】（実施形態3）次に、本発明の第3の実施形態を説明する。

【0143】前述したように、本発明で用いる合金では、TiとBとが結合した化合物（TiB₂など）が溶湯中で形成されやすく、その結果、溶湯の液相線温度が従来の組成を有する鉄基希土類磁石原料合金の溶湯に比べて高くなる。

【0144】本発明者は、TiおよびBを含む鉄基合金に適量のC（炭素）を添加すれば、合金溶湯の液相線温度が5°C以上（例えば約10～40°C）低下することを見出した。炭素の添加によって合金溶湯の液相線温度が下がると、その分、溶湯温度を低下させても、TiB₂などの晶出が抑制されるため、溶湯粘度はほとんど増加せず、安定した溶湯流れの形成を継続的に行うことが可能になる。溶湯温度が低くなると、冷却ロールの表面で充分な冷却を達成することができるため、ロールでの巻きつきを防止するとともに、急冷凝固合金組織を均一微細化することが可能になる。

【0145】本実施形態では、組成式が（Fe_{1-x-y-z-m-n}Ti_x）_{100-x-y-z-m-n}（B_y、C_z）、R、Ti、M_nで表現される合金溶湯をストリップキャスト法で急冷することにより、鉄基希土類急冷凝固合金を作製する。ここで、TiはCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素であり、RはY（イットリウム）および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素である。Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の元素である。

【0146】上記組成式中のx、y、z、m、n、およびpは、それぞれ、以下の関係式を満足する。

【0147】10< x ≤ 25原子%

7 ≤ y < 10原子%

0.5 ≤ z ≤ 12原子%

0 ≤ m ≤ 0.5

0 ≤ n ≤ 10原子%、および

0.01 ≤ p ≤ 0.25

【0148】上記合金の溶湯を凝固させるため、本実施形態においても、図3に示すストリップキャスト装置を使用する。なお、本実施形態では、酸素濃度が質量比率で1000ppm以下の原料を熔融し、熔融状態における合金の酸素濃度を質量比率で3000ppm以下に制御する。溶湯の酸素濃度は雰囲気中の酸素分圧や溶融から急冷凝固までの時間などによって変化するため、本実施形態では、これらの諸条件を調節することにより、酸素濃度が3000ppmを超えないようにしている。

【0149】シュート5上に供給された溶湯3は、シュートの先端部から冷却ロール7の表面に対して圧力を加えられずに供給され、冷却ロール7の表面に溶湯のパド

ル6を形成する。本実施形態では、炭素を添加することにより、溶湯の液相線温度を低く維持しているため、溶湯の動粘度は、溶湯温度が1200℃以上の場合、 $5 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$ 以下に維持され、スムーズな湯流れが実現する。

【0150】シュート5上における溶湯3の温度は、液相線温度よりも100℃以上高い温度であることが望ましい。溶湯3の温度が低すぎると、急冷後の合金特性に悪影響を及ぼす初晶が局所的に核発生し、これが凝固後に残存してしまうことがあるからである。

【0151】ストリップキャスト工程における種々の条件は、最初の実施形態について説明したことが適用される。また、急冷合金に対して行う後の工程は、第1の実施形態における工程と同様である。

【0152】なお、得られた急冷合金薄帯の「かさ密度」は0.5グラム(g)/cc以下であることが多い。ため、急冷後、適当な粉碎装置を用いて「かさ密度」が1g/cc以上になるように合金を粉碎し、回収することが好ましい。

【0153】このストリップキャスト工程以降の工程は、第1の実施形態における工程と同様の工程を行えばよい。

【0154】本実施形態によれば、TiとともにCを鉄基希土類合金に添加することにより、合金溶湯の液相線温度を下げ、急冷合金を量産レベルで安定して製造することが可能となる。

【0155】（実施形態4）従来のストリップキャスト法における冷却ロールの周速度は非常に遅く、1~2m/秒程度である。本発明で用いる合金組成では、Ti添加により、比較的低速度でも良質な急冷合金組織を形成することができるが、磁石特性をできるだけ向上させるには、従来のストリップキャスト法における周速度よりも倍に速い周速度で溶湯の冷却を行うことが好ましい。

【0156】しかし、ストリップキャスト法において、冷却ロールの回転速度を高めると、合金溶湯を十分に引き上げることが困難になる。ストリップキャスト法の場合、メルトスピニング法に比べて、回転するロール表面に対する溶湯の密着度が低い。これは、ロール表面に形成される薄い空気層が溶湯とロール表面との間に侵入することが一因である。このため、冷却ロールを高速で回転させると、溶湯がロール表面上で溜り、溶湯を引き上げられなくなるからである。これに対して、メルトスピニング法による場合は、ノズルオリフィスを介して大きな運動量を持つ溶湯の細い噴流を冷却ロール表面にぶつけるため、空気層を割って溶湯をロール表面に密着させることができ、たとえ冷却ロールが高速回転している場合でも、所望の急冷凝固合金を形成することが可能である。

【0157】このような事情から、従来は、冷却速度を

高める必要がある場合、メルトスピニング法を用いて冷却ロールの周速度を高め（例えば20m/秒以上）に設定していた。逆に冷却速度が遅くて良い場合は、ストリップキャスト法を用いて冷却ロールの周速度を低く（例えば1~2m/秒）設定していた。

【0158】鉄基希土類合金磁石を液体急冷法によって作製する場合、冷却速度を十分に高めないと、所望の微細組織構造を得ることができない。特に、Nd-Fe-B系化合物からなる硬磁性相と α -Feなどの軟磁性相とが交換相互作用によって磁気的に結合したナノコンボジット磁石を製造する場合、従来、メルトスピニング法によらなければ冷却速度が不十分になるため、所望の急冷組織が得られなかった。従って、このようなナノコンボジット磁石をストリップキャスト法で量産することは実現されていなかった。

【0159】本発明者らは、従来のストリップキャスト法によれば実現困難であるとされていた冷却速度を達成するため、高速（周速度：10m/秒以上）で回転する冷却ロールを用いるストリップキャスト法の開発を検討してきた。本発明者らのストリップキャスト法では、合金溶湯を傾斜したシュート（案内手段）上に供給し、溶湯の自重を利用してシュート上で合金溶湯の溝方向流れを形成する。このようにして比較的大きな運動量を溶湯に与えることにより、冷却ロール表面に溶湯をぶつけ、高速回転する冷却ロールの表面に溶湯を密着させることが可能になる。

【0160】しかしながら、本発明者らの上記ストリップキャスト法によれば、CやNbを添加し、減圧雰囲気下で溶湯の急冷を行っても、急冷合金が冷却ロールへ巻きついてしまう場合があることがわかった。急冷合金が冷却ロールに巻きつくこと、急冷工程は中断を余儀なくされ、急冷工程を継続することができなくなる。このことは、量産化実現にとって大きな支障となる。

【0161】本実施形態では、高速で回転する冷却ロール上に溶湯のバドルを安定して形成し、しかも、急冷合金がロールに巻きつくことを防止するのに有益なシュートの構成および冷却ロールを詳細に説明する。

【0162】本実施形態では、図3に示す装置を用いてストリップキャスト法を行う。前述したように、シュート5の溶湯案内面は、水平方向に対して傾斜し、冷却ロール7までの溶湯の流路を形成する。シュート5の案内面と水平方向との間の角度（傾斜角度） α は溶湯の供給量（レート）を微妙に制御するために重要なパラメータである。

【0163】シュート5上に供給された溶湯3は、シュート5の先端部から冷却ロール7の表面に対して水平方向の運動量をもって供給され、冷却ロール7の表面に溶湯のバドル6を形成する。

【0164】図4は、シュート5の上面を示す斜視図である。このシュート5は、一箇所で受けた溶湯を先端部

10

20

30

40

50

に案内するガイドを有している。これらガイドの一部は、流路の両側だけではなく、中央部にも存在し、溶湯流れを2条に分けることができる。図4の例では、2条の溶湯流れの各々の幅が10mmに規定され、また、各条の溶湯は10mmの間隔で冷却ロール表面に供給される。このようなガイドを持つシュート5によれば、冷却ロール7の胴長方向（軸線方向：図3の紙面に垂直な方向）において、一定幅にわたって略均一な厚さに広げた状態で溶湯3を供給することができる。なお、このときの各リボンの幅（急冷合金の幅）は5～20mmに設定される。リボン幅が5mmを下回ると量産性が低下し、20mmを超えると安定したキャストを行うことが難しくなるからである。

【0165】ストリップキャスト装置に用いられる冷却ロール7の表面には、通常、微細な凹凸が存在する。冷却ロール7の表面粗度が大きくなると、ロール表面に存在する微細な凹部のために合金溶湯と冷却ロール7の表面との実効的な接触面積が減少してしまうことになる。

【0166】図5は、周速度10m/秒で回転する冷却ロール7の表面に接触する溶湯の断面形状を模式的に示している。冷却ロール7の表面と溶湯の下面との間に雰囲気ガスが巻き込まれ、多数のエアーポケット50が形成される。冷却ロール7の表面粗度が大きいほど、ロール表面と溶湯との実効的な接触面積は低下する。その結果、冷却ロール7による溶湯からの放熱量が低下し、合金溶湯3の冷却速度が実質的に減少してしまう。このようにして冷却ロール7による冷却能力が低下すると、冷却ロール7と接して凝固しつつある急冷合金8の温度が十分に低下しなくなる。

【0167】急冷合金8は、凝固に際して収縮するが、この凝固収縮が不十分になる程、回転する冷却ロール7から剥離しにくく、冷却ロール7に巻きつきやすくなる。そして、リボン状の急冷合金8が冷却ロール7に巻きつくと、冷却工程を継続できなくなってしまう。特にストリップキャスト法による場合は、溶湯がロール表面に接触している部分のロール周方向サイズがメルトスピニング法と比べて長いので、急冷合金8が冷却ロール7に巻きつきやすいという問題がある。

【0168】一方、メルトスピニング法によれば、図6に示すように、ノズルを介して比較的少量の合金溶湯を冷却ロール7の表面に噴射し、溶湯をロール表面に押し付けるため、冷却ロール7の表面粗度が大きい場合でも、ロール表面と溶湯との間の密着性は良く、冷却能力が高くなるため、合金溶湯を十分な速度で均一に冷却することが容易である。

【0169】以上説明したように、本発明で採用するタイプのストリップキャスト法による場合は、冷却ロール7を周速度10m/秒以上で高速回転させると、冷却ロール7の表面における中心線粗さRaが急冷合金8の冷却ロール7への巻きつきに重要な影響を与える。本発明

者の実験によると、冷却ロール7の表面における中心線粗さRaが20μm以下であれば、充分な冷却効果を得られるため、急冷合金8が冷却ロール7に巻きついてしまうことを防止できることがわかった。

【0170】以上のことから、本発明では、冷却ロール表面の中心線粗さRaを20μm以下に設定する。なお、量産レベルで安定した操業を継続するには、冷却ロール表面の中心線粗さRaは13μm以下に設定することが好ましく、7μm以下に設定することが更に好ましい。

【0171】また、本発明で採用するストリップキャスト法では、図3および図4に示すように、合金溶湯3が傾斜したシュート5上をゆっくりと流れるため、高速回転する冷却ロール7の表面上に適切なパドル6を形成するには、合金溶湯3の動粘度の大きさが重要である。実験によると、合金溶湯3の動粘度が $5 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{秒}$ を超える場合、冷却ロール7上でパドル6が形成されず、溶湯3がスブラッシュとなり急冷されなくなってしまうことがわかった。このため、合金溶湯3の動粘度は $5 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{秒}$ 以下に調節することが好ましく、 $1 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{秒}$ 以下に調節することが更に好ましい。

【0172】上記シュート5の表面温度が低すぎると、冷却ロール7に流れ着く前に合金溶湯3の動粘度が高くなりすぎる場合がある。シュート5の表面温度が300℃以下の場合、シュート5上にて溶湯が冷却され、動粘度が $5 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{秒}$ を超えてしまうため、シュート5の表面温度は300℃以上に保持することが好ましい。シュート5の表面温度は450℃以上に保持することが好ましく、550℃以上に保持することが更に好ましい。

【0173】シュート5の材質にはアルミナ、シリカ、ジルコニア、マグネシア、ムライトなどのセラミックス材料の他、ボロンナイトライド（BN）を用いることができる。鉄基希土類合金の溶湯との「ぬれ性」に優れ、また、希土類と反応しにくいアルミナ（ Al_2O_3 ）を80体積以上含む材料を用いることが好ましい。また、熱ショックによってシュート5が割れないようにするためには、緻密質より多孔質セラミックスが好ましい。ただし、溶湯が流れるシュートの表面は、できる限り滑らかにすることが好ましい。

【0174】冷却ロール7によって安定して合金溶湯を急冷するためには、熱伝導率が $50 \text{ W/m}^2/\text{K}$ 以上の基材を用いて冷却ロールを作製することが好ましい。このような冷却ロール7の基材としては、銅および銅合金の他、鉄、炭素鋼、タングステン、モリブデン、ベリリウム、タンタルを用いることができる。溶湯を安定して冷却するためには、熱伝導が $100 \text{ W/m}^2/\text{K}$ 以上である銅および銅合金あるいはタングステン、モリブデン、ベリリウムを用いることが特に好ましい。

【0175】冷却ロール7の基材の表面に厚さ1μm～

10

20

30

40

50

100 μm のクロム、ニッケル、または、それらを組み合わせためっきでコートすることが好ましい。これにより、銅などの融点が低く、また硬度が低い冷却ロール基材の欠点を補うことができる。また、溶湯冷却中にロール表面に発生するロール基材の溶融および傷を抑制できる。その結果、ロール表面の中心線粗さRaを長期間20 μm 以下に保持できる。鍍金膜の厚さは、膜強度および熱伝導の観点から、1 μm ~100 μm の範囲内にあることが好ましい。鍍金膜の更に好ましい厚さは5 μm ~70 μm であり、最も好ましい厚さは10 μm ~40 μm である。

【0176】なお、合金溶湯3の一条あたりの溶湯急冷処理速度が1 kg/分未満の場合、冷却ロール上にパドル6が形成されず、安定した溶湯急冷状態が維持できない。一方、合金溶湯3の一条あたりの溶湯急冷処理速度が4 kg/分以上になると、ロール表面で形成しうるパドル6の体積以上に溶湯3が供給されるため、余分な溶湯3はスプラッシュとなり急冷されない。従って、合金溶湯3の一条あたりの溶湯急冷処理速度は、0.7 kg/分以上、4 kg/分未満であることが好ましい。更に好ましい範囲は1 kg/分以上3 kg/分未満であり、最も好ましい範囲は1 kg/分以上2 kg/分未満である。量産性の観点からは、図4に示すようなガイドを用いて、冷却ロール上に供給する溶湯を複数条にすることが好ましい。複数条の溶湯を流す場合は、溶湯同士が接触しないような適切な間隔を設けることが望ましい。

【0177】本実施形態では、冷却ロール7のロール表面速度を10 m/秒以上26 m/秒以下に設定する。ロール表面速度が10 m/秒以上にすることで、 α -Fe相が析出をより効果的に抑制することができる。ただし、ロール表面周速度が26 m/秒を超えると、ロール上に生成されるべき溶湯のパドル6が安定せず、溶湯が跳ね飛ばされるような状態となる（スプラッシュが発生する）ため、所望の溶湯急冷状態を得ることができない。ロール表面速度のより好ましい上限は、23 m/秒以下であり、更に好ましい上限は20 m/秒以下である。

【0178】パドル6の生成状態は、ロール表面速度以外だけではなく、冷却ロール7への溶湯供給速度にも影響される。安定したパドル6の生成状態を維持するには、冷却ロール7に供給する溶湯の1つの流れあたりの溶湯供給速度を上述した範囲内に調節することが好ましい。

【0179】本実施形態では、急冷雰囲気圧力を0.13 kPa以上100 kPa未満に調節する。急冷雰囲気圧力が0.13 kPa未満になると、冷却ロール表面に合金溶湯が張り付き、急冷合金をロールから剥離できなくなるおそれがある。一方、急冷雰囲気圧力が100 kPaを超えて大きくなると、冷却ロール表面と合金溶湯との間に雰囲気ガスが巻き込まれ、ガスポケット

が生じやすくなる。ガスポケットが形成されると、均一な急冷状態が得られず、不均質な急冷組織となるため、過冷却状態を安定して得ることができなくなる。急冷雰囲気圧力の好ましい圧力範囲は1.3 kPa以上90 kPa以下、より好ましい範囲は10 kPa以上70 kPa以下、更に好ましい範囲は10 kPa以上60 kPa以下である。最も好ましい範囲は30 kPa以上50 kPa以下である。

【0180】以上のようにして合金溶湯を急冷する場合、冷却ロール表面に対する合金溶湯の密着性が向上し、高い冷却効果が均一に付与されるため、急冷合金が適切に形成され、冷却ロールに巻きつくというトラブルがほとんど生じなくなる。

【0181】〔急冷合金の組織構造〕図7は、Tiの添加の有無により、急冷合金の断面組織構造がどのように変化するかを模式的に示している。

【0182】まず、図7からわかるように、ストリップキャスト法で作製した急冷合金（リボン）は、メルトスピニング法によって作製される急冷合金よりも厚くなるため、急冷合金の自由面（冷却ロールと接触しない面：上端面）近傍に結晶粒が形成される。また、ロール面（冷却ロールと接触する面：下端面）の近傍においても、結晶粒が形成される。これは、ロール面に不均一核が生成されやすく、不均一核の回りに結晶成長が進行しやすいためである。ストリップキャスト法にて作製した急冷合金では、各端面から膜中央部に近づくに従って結晶粒のサイズおよび結晶粒の体積密度は小さくなる。

【0183】Tiを添加した場合、形成される結晶粒は全般的に小さく、特に、 α -Feは微細で数も少ない。そして、膜の中央部では非晶質部分が存在しやすく、ロール面側に形成される結晶質層は、自由面側に形成される結晶質層よりも薄い。更に、Tiを添加した場合は、鉄基硼化物（Fe-B）が析出している。これに対し、Tiを添加しなかった場合、結晶粒のサイズは大きく、特に α -Feが粗大である。自由面の冷却速度は、急冷合金が厚くなるほど、低下するため、急冷合金が厚くなるほど、粗大な結晶粒が自由面側に形成されやすくなる。このため、急冷合金を厚くするほど、最終的に得られる磁石特性が低下してしまう。しかし、Tiの添加は、結晶粒の粗大化を抑制する効果があるため、急冷合金を厚く形成しやすくなる。本実施形態の場合、急冷合金の厚さを50~200 μm 程度の範囲に設定することが可能である。粉碎後のおける粉末粒子の形状や磁気特性の観点から、急冷合金の好ましい厚さは、60~150 μm であり、更に好ましい厚さは、70~120 μm である。このように本発明によれば、従来技術では困難であった厚さ80 μm 以上の急冷合金を作製して優れた磁気特性を持つナノコンポジット磁石を得ることができる。なお、図7においては、各結晶粒を模式的に実際よりも大きく記載している。現実の各結晶粒のサイズは図示で

きない程度に小さい。

【0184】本実施形態にかかる高速ストリップキャスト法によれば、急冷合金の断面中央部分では非晶質が存在しても、自由面およびロール面（厚さ方向を横切る2つの端面）の側に結晶質部分が存在する。そして、Tiを添加した場合、 α -Feの粗大化が抑制されるため、磁石特性が優れたものとなる。冷却ロールの周速度がストリップキャスト法としては従来よりも格段に速いため、結晶粒は粗大化せず、ナノコンポジット磁石に通した組織構造を持った急冷合金が得られる。また、急冷後の合金（リボン）は、その自由面およびロール面の両面近傍に結晶相が存在する組織構造を有しているため、熱処理前に急冷合金を粉砕する場合でも、急冷合金の粉砕が容易になり、粉砕効率が向上する。

【0185】なお、本実施形態の製造方法によって最終的に得られるナノコンポジット磁石をモータに使用したとき、強い減磁界が磁石に作用しても充分なレベルの磁化を保持し続けるためには、600kA/m以上の高い固有保磁力 H_c を有することが望まれる。このように高い保磁力を実現するには、急冷合金の金属組織中に含まれる $R_2Fe_{1-x}B_x$ 型化合物相の体積比率を60%以上にすることが必要になる。

【0186】本実施形態における鉄基希土類合金の組成は、 $R_2Fe_{1-x}B_x$ 型化合物の化学量論組成に比べてR濃度が低く、B濃度が高い。このような組成においては、Tiの添加により、過剰に存在するBが鉄と結合し、鉄基調化物を形成しやすくなる。Tiの添加によって得られる鉄基調化物は、ナノメートルオーダーのサイズを持ち、強磁性である。Tiの添加は、粗大なFeの析出を抑制するだけでなく、上記の微細な強磁性鉄基調化物を生成するため、この鉄基調化物と $R_2Fe_{1-x}B_x$ 型化合物相とが交換相互作用によって強固に結合し、磁化の低下を招来することなく、 $R_2Fe_{1-x}B_x$ と同一の化学量論組成を有する鉄基希土類合金磁石と同等レベルの硬磁気特性を発現することが可能になる。

【0187】本実施形態における鉄基希土類合金磁石の場合、硬磁性である $R_2Fe_{1-x}B_x$ 相に加え、飽和磁化の値が $R_2Fe_{1-x}B_x$ 相と同等レベル以上の軟磁性鉄基調化物を同一組織内に含むため、磁石のリコイル透磁率 μ_r が、同程度の保磁力 H_c を有する合金では、鉄基調化物を含まない鉄基希土類合金磁石に比べて高くなる。具体的には、本実施形態の鉄基希土類合金磁石におけるリコイル透磁率 μ_r は、希土類Rの組成比率 y が8.5原子%以上10原子%未満の範囲では1.1~1.4の値を示し、組成比率 y が7原子%以上8.5原子%以下の範囲では1.2~2.0の値を示す。なお、組成比率 y が8.5原子%以上10原子%未満の範囲において、本実施形態の磁石の残留磁束密度 B_r は0.7~0.9T、保磁力 H_c は600~1200kA/mであり、組成比率 y が7原子%以上8.5原子%以下の範囲において、

残留磁束密度 B_r は0.75~0.95T、保磁力 H_c は500~950kA/mである。なお、リコイル透磁率 μ_r の測定は、JIS規格のC2501-1989に記載の方法で行った。リコイル透磁率 μ_r は、ナノコンポジット構造が形成された合金、すなわち、硬磁性相および軟磁性相が結晶化して交換相互作用によって磁氣的に結合した合金に固有のパラメータである。

【0188】リコイル透磁率 μ_r は、磁石をモータに用いる場合に磁石の性能を評価する上で重要な指標となる。以下、この点を説明する。すなわち、モータの回転速度を増加させると逆起電力が増大し、逆起電力の大きさが入力電圧に等しくなった時点でモータ回転数の上昇が停止する。モータの回転数を更に高めるために、電気的に磁石動作点（ $-B/H$ ）が低パーミアンズ側に下げることにより、逆起電力を低くする必要がある（弱め界磁制御）。このような制御により、モータ回転数の上限を更に上昇させる効果は、磁石のリコイル透磁率 μ_r が高いほど顕著である。本発明による磁石は、上述のように高いリコイル透磁率 μ_r を示すため、モータに対して好適に用いられる。

【0189】なお、本発明では、冷却ロールの周速度がストリップキャスト法としては従来に比べて格段に速いが、メルトスピニング法で実現されている周速度（例えば20m/秒以上）に比べると遅いため、もしTiを添加しなければ、 α -Feが $R_2Fe_{1-x}B_x$ 系化合物に優先して析出し、粗大化してしまう。

【0190】以上説明した急冷方法によって得られた急冷合金は、粉砕された後、熱処理を受ける。

【0191】熱処理後における合金中の $R_2Fe_{1-x}B_x$ 型化合物相のサイズ（平均粒径または平均長軸長さ）は、単軸結晶粒径である300nm以下となる必要があり、20nm以上200nm以下であることが好ましく、20nm以上100nm以下であることが更に好ましい。これに対し、鉄基調化物相や α -Fe相の平均結晶粒径が50nmを超えると、各構成相間に働く交換相互作用が弱まり、減磁曲線の角形性が劣化するため、 $(BH)_{max}$ が低下してしまう。これらの平均結晶粒径が1nmを下回ると、高い保磁力を得られなくなる。以上のことから、調化物相や α -Fe相などの軟磁性相の平均粒径は1nm以上50nm以下であることが好ましく、30nm以下であることが更に好ましい。

【0192】本発明による製造方法で作製された合金から最終的に得られる粉末粒子のサイズ（粒径）は好ましくは10~300 μ mであり、より好ましくは50~150 μ mである。更に好ましい粒径の範囲は、80~110 μ mである。

【0193】こうして得られた粉末粒子の長軸サイズに対する短軸サイズの平均比率（アスペクト比）は0.3~1.0程度である。本実施形態で作製した急冷合金の厚さが粉末粒径に対して充分に厚いため、等軸形状に近

い形状の粉末粒子が得られやすい。これに対し、通常のメルトスピニングによって作製した急冷合金の厚さは20〜40 μm 程度と薄いため、本実施形態と同じ粉碎条件では、アスペクト比の小さいフレーク状の粉末粒子が得られる。本実施形態で得られる粉末は、アスペクト比が1に近いため、充填性や流動性に優れ、ボンド磁石に最適である。

【0194】このようにして得られた磁粉の保磁力 H_c は600 kA/m以上の値を示すことができる。

【0195】[磁粉の耐酸化性および磁気特性の粒度分布依存性]本発明による製造方法で合金から最終的に得られる磁粉（以下、ナノコンポジット磁粉と称する。）の耐酸化性および磁気特性の粒度分布依存性を従来の急冷磁石粉末と比較しながら説明する。

【0196】ここでは、本発明によるナノコンポジット磁粉と、従来の急冷磁石粉末としてMQP社から市販されているMQP-BおよびMQP-O（何れも最大粒径が300 μm 以下）とを比較する。なお、本発明によるナノコンポジット磁粉の試料は、以下のようにして作製した。

【0197】まず、後述する実施例1と同様の方法で作製した急冷合金（Nd：9原子％、B：11原子％、Ti：3原子％、Co：2原子％、残部Feの合金、平均厚さ：70 μm 、標準偏差 σ ：13 μm ）を850 μm 以下に粉碎した後、長さ約500 mmの均熱帯を有するフープベルト炉を用い、Ar流気下、ベルト送り速度100 mm/分にて680℃に保持した炉内へ粉末を20 g/分の供給速度で投入することによって熱処理を施し、磁粉を得た。得られた磁粉をピンディスクミルを用いてアスペクト比が0.4以上1.0以下の粉末を体積基準で30％程度含む粒度分布になるよう粉碎したものをナノコンポジット磁粉の試料NCP-Oとした。

【0198】表1に、それぞれの磁粉を種々の温度（23℃、300℃および350℃）で大気中に1時間放置した後の酸素含有率と磁気特性を示す。磁気特性は振動式磁石計を用いて測定した。23℃で測定した結果とともに、大気中で300℃および350℃でそれぞれ1時間放置した後に測定した結果を合せて示している。

【0199】表1に示したように、MQP-Bは、大気中に300℃で1時間放置すると酸素含有量が0.67質量％まで増加し、350℃で1時間放置すると、1.93質量％まで増加した。MQP-Oは、300℃で1時間放置すると酸素含有量が0.24質量％まで増加し、350℃で1時間放置すると、0.59質量％まで増加した。

【0200】これに対し、ナノコンポジット磁粉NCP-Oは、大気中に300℃で1時間放置しても酸素含有量は0.10質量％までしか増加せず、350℃で1時間放置した後の酸素含有率は、0.20質量％までであり、従来の急冷磁石粉末と比較して耐酸化性に優れてい

ることがわかる。

【0201】また、それぞれの磁粉の加熱質量増加率を熱天秤を用いて測定した結果を図15に示す。なお、加熱雰囲気は大気中で、昇温速度は10℃/分とした。図15から分かるように、ナノコンポジット磁粉NCP-Oは、MQP-BやMQP-Oに比べて酸化による質量増加が少なく、耐酸化性に優れている。

【0202】次に、表1の磁気特性についてみると、MQP-Bは、磁気特性の低下も著しく、例えば(BH)_{max}は、300℃で1時間放置すると23℃で1時間放置したものの約65％まで低下し、350℃で1時間放置すると約30％まで低下した。また、MQP-Oの(BH)_{max}は、350℃で1時間放置すると23℃で1時間放置したものの約80％未満にまで低下した。これに対し、ナノコンポジット磁粉NCP-Oは、350℃で1時間放置しても、その(BH)_{max}は23℃で1時間放置したものの約90％までしか低下しなかった。

【0203】このように、ナノコンポジット磁粉は耐酸化性に優れているので、ボンド磁石を作製する工程（例えば、コンパウンドの調製および／または熱硬化）において磁粉が酸化されにくい。従って、磁粉の酸化を抑制するために従来の急冷磁石粉末（特にMQP-B）で必要であった磁粉の防錆処理を簡素化または省略することができる。また、コンパウンドを成形することによって作製した成形体は、その強度を向上させるため樹脂を例えば加熱して硬化する必要がある。従来の急冷磁石粉末を用いる場合には、磁粉の酸化を抑制するために、真空またはArなどの不活性ガス雰囲気中で加熱硬化する必要があったが、ナノコンポジット磁粉を用いることによって、大気中で加熱硬化することが可能となる。すなわち、ナノコンポジット磁粉を用いることによって、ボンド磁石の製造工程を簡略化し、コストを削減することができる。さらに、従来の急冷磁石粉末は、耐酸化性が低かったため、例えば250℃〜300℃程度の温度で樹脂と混練する工程や成形する工程を必要とする射出成形用のボンド磁石には適用することが難しかったが、ナノコンポジット磁粉を用いることによって、射出成形によって作製されるボンド磁石を得ることができる。ナノコンポジット磁粉の優れた耐酸化性の利点を十分に得るためには、300℃以上350℃以下の温度で1時間大気中に放置した後の酸素含有率が0.24質量％以下となるように調製された磁粉を用いることが好ましく、上記の酸素含有率が0.2質量％以下となるように調製された磁粉を用いることが好ましい。例えば、各種回転機やアクチュエータ用のボンド磁石に求められる磁気特性を考慮すると、これらのボンド磁石に好適に用いられる磁粉の磁気特性としては、最終的な状態で、 $B_r \geq 0.7$ T、 $(BH)_{max} \geq 80 \text{ kJ/m}^3$ 、 $H_{cJ} \geq 600 \text{ kA/m}$ を満足することが好ましい。上述の耐酸化性を有

する磁粉を用いると、ボンド磁石の作製工程における酸化の影響を考慮しても上記の磁気特性を得ることができる。

*【0204】

【表1】

*

Powder	Temperature (°C)	(BH) _{max} (kJ/m ³)	B _r (T)	H _{co} (kA/m)	O ₂ (%)
NCP-0	23	107.0	0.802	1009.7	0.02
	300	103.1	0.780	989.3	0.10
	350	96.1	0.774	1006.8	0.20
MQP-B	23	122.0	0.899	732.6	0.04
	300	79.3	0.762	686.8	0.87
	350	38.2	0.546	635.8	1.93
MQP-O	23	113.0	0.818	1007.6	0.04
	300	105.7	0.802	999.0	0.24
	350	88.5	0.744	977.4	0.59

【0205】本発明によるナノコンポジット磁粉は、その組成および組織の特徴のため、その磁気特性に粒径依存性が小さいという特徴を有している。ナノコンポジット磁粉は、希土類元素Rの含有率が比較的低く、Rがリッチな粒界相が存在しないのに加え、R、Fe、B相を取り囲むように小さな調化物相が分散しており、さらにTiは調素との親和性が高いので調化物相は他の相よりも多くのTiを含有している。その結果、ナノコンポジット磁粉は、従来の急冷磁石粉末に比べ耐酸化性に優れており、優れた磁気特性を粉砕後に維持できる。

【0206】従来の急冷磁石粉末は比較的多量の希土類元素Rを含むので酸化されやすく、粒径が小さいほど粉末粒子表面の酸化による磁気特性の低下が顕著となる。例えば、MQP-B（最大粒径300μm以下）では、表2に示すように、粒径が75μm以下、特に53μm以下の粉末粒子の磁気特性が低下している。残留磁束密度B_rについてみると、最も高い値を示している125μm超150μm以下の粉末粒子の残留磁束密度B_r（0.90T）に対して、53μm以下の粉末粒子の残留磁束密度B_r（0.79T）は90%未満にまで低下している。また、(BH)_{max}について見ると、53μm以下の粉末粒子の平均の(BH)_{max}（38μm以下と38μm超53μm以下の値の単純平均）は85.5kJ/m³であり、150μm超212μm以下の粉末粒子の平均の(BH)_{max}（150μm超180μm以下と180μm超212μm以下の値の単純平均）である114.6kJ/m³の75%未満にまで低下している。

【0207】これに対し、ナノコンポジット磁粉は酸化による磁気特性の低下の割合が低く、磁気特性の粒径依存性が小さい。例えば、ナノコンポジット磁粉NCP-O（最大粒径300μm以下）では、表3に示すように、磁気特性はほとんど粒径に依存せず、優れた磁気特性を有している。例えば、残留磁束密度B_rは、最も高

い値を示している106μm超125μm以下の粉末粒子の残留磁束密度B_r（0.845T）に対して、53μm以下の粉末粒子の残留磁束密度B_r（約0.829T）は98%以上の値を有している。また、(BH)_{max}についても、53μm以下の粉末粒子の平均の(BH)_{max}は104.6kJ/m³であり、150μm超212μm以下の粉末粒子の平均の(BH)_{max}である106.6kJ/m³の98%以上の値を有している。種々の組成のナノコンポジット磁粉について同様の評価を行った結果、ほとんどの組成についてナノコンポジット磁粉の53μm以下の粉末粒子の平均の(BH)_{max}は、150μm超212μm以下の粉末粒子の平均の(BH)_{max}の90%以上の値を有し、多くの組成について95%以上の値が得られることが分かった。なお、磁粉の粒度分布の評価は、JIS8801準拠の標準ふるいを用いて行った。

【0208】

【表2】

Particle Size (μm)	(BH) _{max} (kJ/m ³)	H _{co} (kA/m)	B _r (T)
≤38	83.7	744	0.79
38<, ≤53	87.2	762	0.79
53<, ≤75	94.2	739	0.82
75<, ≤106	108.3	748	0.84
106<, ≤125	111.5	754	0.86
125<, ≤150	116.8	741	0.90
150<, ≤180	115.7	750	0.88
180<, ≤212	113.4	763	0.85
212<, ≤250	110.1	755	0.87
250<	112.9	752	0.86

【0209】

【表3】

Particle Size (μm)	NCP-0			
	Mass %	$(BH)_{\max}$ (kJ/m^3)	H_{cJ} (kA/m)	B_r (T)
≤ 38	9.36	104.5	854.86	0.830
$38 <, \leq 53$	6.83	104.77	844.00	0.829
$53 <, \leq 75$	12.34	107.16	853.39	0.831
$75 <, \leq 106$	19.76	110.67	859.75	0.837
$106 <, \leq 125$	12.23	112.64	866.12	0.845
$125 <, \leq 150$	15.24	111.63	864.21	0.843
$150 <, \leq 180$	9.42	105.64	896.30	0.820
$180 <, \leq 212$	8.89	107.61	849.41	0.831
$212 <, \leq 250$	4.27	99.67	851.16	0.814
$250 <$	1.65	88.44	844.64	0.800

【0210】このように、ナノコンポジット磁粉は従来の急冷磁石粉末と同等以上の磁気特性を有しているの
で、従来の急冷磁石粉末（例えばMQ粉）の代わりにボ
ンド磁石用磁粉として用いることができる。勿論、ボ
ンド磁石用磁粉をナノコンポジット磁粉のみで構成して
も良いが、例えば、上述したMQ粉のうちの粒径が53 μm
以下の粉末粒子をナノコンポジット磁粉に置き換えて
もよい。

【0211】以下に、53 μm 以下および38 μm 以下
の微粒子を混入することによって充填性が改善される効
果を実験結果を例示しながら説明する。

【0212】まず、表4に示すような種々の粒度分布を
有するナノコンポジット磁粉の試料NCP-1からNCP-
5を作製した。なお、NCP-1の磁粉は、0.5
mmφのスクリーンを用いてパワーミルで粉砕すること
によって調製し、他のNCP-2～NCP-5の磁粉
は、上述したピンミル装置を用いて、それぞれ回転数を
3000rpm、4000rpm、5000rpmおよ
び8000rpmとすることによって調製した。これら*

*の磁粉試料NCP-1からNCP-5をタップデンサを
用いてタップ密度を測定した結果を表5に示す。表5に
は、それぞれの磁粉試料中に含まれる粒径が53 μm 以
下の粉末粒子の質量%および粒径が250 μm 超の粉末
粒子の質量%を合せて示している。

【0213】表5の結果からわかるように、粒径が53
 μm 以下の粒子を10質量%以上（厳密には9.5質量
%以上）含む試料NCP-3～NCP-5は、タップ密
度が4.3 g/cm^3 以上と高く、磁粉の充填性が優れ
ていることが分かる。磁粉のタップ密度で評価される磁
粉の充填性は、ボンド磁石用のコンパウンドの粉末の充
填性と相関しており、充填性の高い磁粉を用いて調製さ
れたコンパウンドの粉末の充填性も高くなる。従って、
粒径が53 μm 以下のナノコンポジット磁粉を10質量
%含む磁粉を用いることによって、ボンド磁石用コンパ
ウンドの粉末の充填性や流動性が改善され、高品質の成
形体を得ることができる。

【0214】

【表4】

Particle Size (μm)	NCP-0			
	Mass %	$(BH)_{\max}$ (kJ/m^3)	H_{cJ} (kA/m)	B_r (T)
≤ 38	9.36	104.5	854.86	0.830
$38 <, \leq 53$	6.83	104.77	844.00	0.829
$53 <, \leq 75$	12.34	107.16	853.39	0.831
$75 <, \leq 106$	19.76	110.67	859.75	0.837
$106 <, \leq 125$	12.23	112.64	866.12	0.845
$125 <, \leq 150$	15.24	111.63	864.21	0.843
$150 <, \leq 180$	9.42	105.64	896.30	0.820
$180 <, \leq 212$	8.89	107.61	849.41	0.831
$212 <, \leq 250$	4.27	99.67	851.16	0.814
$250 <$	1.65	88.44	844.64	0.800

【0215】

【表5】

	(Mass %)	(Mass %)	(g/cm ³)
	≦53 μm	250 μm<	Tap Density
NCP-1	4.30	12.00	4.01
NCP-2	4.59	7.21	4.12
NCP-3	9.50	2.59	4.28
NCP-4	16.30	1.27	4.25
NCP-5	38.90	0.00	4.33

【0216】さらに、成形密度を向上するためには、粒径が3.8 μm以下の粉末粒子を含むことが好ましい。表6に示す粒度分布を有するナノコンポジット磁粉NCP-11からNCP-16を調製し、それぞれ2質量%のエポキシ樹脂と混合することによってコンパウンドを得た。それぞれのコンパウンドを用いて成形圧力9.80 MPa (10 t/cm²)で圧縮成形することによってボ

※ンド磁石成形体を得た。それぞれのボンド磁石成形体の密度を、それぞれのコンパウンドに用いた磁粉中の粒径が3.8 μm以下の粉末粒子の含有率とともに図16に示す。

【0217】

【表6】

Particle Size (μm)	NCP					
	-11	-12	-13	-14	-15	-16
≦38	2.1	4.9	9.4	11.6	15.0	18.0
38<, ≦53	2.5	4.6	6.8	11.0	23.2	20.9
53<, ≦75	5.2	11.8	12.3	14.4	26.0	26.9
75<, ≦106	13.9	23.1	19.8	20.3	22.4	23.6
106<, ≦125	11.1	13.5	12.2	13.5	6.1	5.6
125<, ≦150	14.1	16.3	15.2	10.4	2.9	3.4
150<, ≦180	17.5	10.7	9.4	9.0	2.2	1.2
180<, ≦212	17.6	9.1	8.9	6.9	1.7	0.4
212<, ≦250	8.8	3.5	4.3	2.1	0.5	0.1
250<, ≦300	4.3	1.6	1.7	0.8	0.1	0.0
300<	2.9	1.0	0.0	0.1	0.0	0.0

【0218】図16からわかるように、3.8 μm以下の粉末粒子の含有率が低すぎても高すぎても成形体の密度は低下する。種々検討した結果、十分な成形体密度を得るためには、粒径が3.8 μm以下の粉末粒子を約8質量%以上含む磁粉を用いることが好ましい。但し、粒径が3.8 μm以下の粉末粒子の含有率が約1.6質量%を超える磁粉を用いると、成形性が低下し、高い密度の高品位の成形体を得られないことがある。

【0219】〔コンパウンドおよび磁石体の製造方法の説明〕上述のナノコンポジット磁粉を含むボンド磁石用磁粉は、樹脂等の結合剤と混合され、ボンド磁石用コンパウンドが製造される。

【0220】射出成形用のコンパウンドは、公知の混練装置（例えばニーダや押出し機）を用いて磁粉と熱可塑性樹脂とを混練することによって製造される。また、圧縮成形用のコンパウンドは、溶剤で希釈した熱硬化性樹脂と磁粉とを混合し、溶剤を除去することによって製造される。得られた磁粉と樹脂との混合物は、必要に応じて、所定の粒度となるように解砕される。解砕の条件などを調整することによって、顆粒状としてもよい。また、粉砕によって得られた粉末材料を造粒してもよい。

【0221】磁粉の耐食性を向上するために、磁粉の表

面に予め化成処理等の公知の表面処理を施しても良い。さらに、磁粉の耐食性や樹脂との濡れ性、コンパウンドの成形性をさらに改善するために、シラン系、チタネート系、アルミネート系、ジルコネート系などの各種カップリング剤、コロイダルシリカなどセラミックス超微粒子、ステアリン酸亜鉛やステアリン酸カルシウムなどの潤滑剤を使用してもよく、熱安定剤、難燃剤、可塑剤などを使用してもよい。

【0222】磁石用コンパウンドは種々の成形方法で種々の用途に用いられるので、用途に応じて、樹脂の種類および磁粉の配合比率が適宜決められる。樹脂としては、例えばエポキシ樹脂、フェノール樹脂やメラミン樹脂などの熱硬化性樹脂や、ポリアミド（ナイロン66、ナイロン6、ナイロン12等）や、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、ポリエステル、ポリフェニレンサルファイドなどの熱可塑性樹脂や、ゴムやエラストマ、さらには、これらの変性体、共重合体、混合物などを用いることができる。

【0223】さらに、本発明の磁粉によってコンパウンドの充填性および/または成形性が改善されるので、従来は用いることが難しかった高粘度の樹脂を用いることもできる。さらに、磁粉は酸化されにくいので、融点ま

たは軟化点が高く従来は使用できなかった樹脂（例えば、ポリイミドや液晶ポリマなど、また、種々の樹脂の高分子重合グレード品）を用いることができるので、ボンド磁石の特性（耐熱性など）を改善することができる。また、熱硬化性樹脂を用いる場合においても、従来よりも高い温度で硬化する樹脂を用いることができる。

【0224】成形方法としては、圧縮成形、圧延成形、カレンダー成形、押出し成形および射出成形を例示することができる。これらの成形方法のうち、圧縮成形、圧延成形および押出し成形では、比較的単純な形状の成形体しか成形できないが、成形時にあまり高い流動性が要求されないため、磁石粉末の充填率を高くできる。本発明による磁粉を用いることによって、従来よりも更に高い（例えば80%を超える）磁粉充填率を実現することができ、最大で90%程度まで充填することができる。但し、充填率を上げすぎると磁粉同士を十分に結合するための樹脂が不足し、ボンド磁石の機械的な強度の低下や、使用時に磁粉の脱落が生じる恐れがあるので、磁粉充填率は、85%以下が好ましい。また、圧縮成形においては本発明の磁粉を用いることによって、成形体の表面に形成される空隙（ポイド）の量を減少でき、表面に形成する樹脂被膜への悪影響を抑制できるという利点が得られる。これらの成形方法には、適宜、熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂、ゴム等が用いられる。

【0225】本発明による磁粉を用いると流動性が向上するので、特に、射出成形用コンパウンドに好適に用いられる。従来の急冷磁石粉末を用いたコンパウンドでは成形が困難であった複雑な形状の成形体を得ることができる。また、従来よりも高い充填率（例えば65%を超える）で磁石粉末を配合できるので、磁石体の磁気特性を向上することができる。さらに、本発明による磁粉は、希土類元素の含有率が比較的少ないので、酸化され難い。従って、比較的軟化点の高い熱可塑性樹脂や熱可塑性エラストマを用いて、比較的高い温度で射出成形を行っても磁気特性が低下しない。

【0226】〔ボンド磁石の応用例〕本発明によるボンド磁石用コンパウンドは、上述したように、従来の急冷磁石粉末（例えばMQI社製の製品名MQP-B）を用いたコンパウンドに比べ、優れた充填性（成形性）を有するとともに、耐熱性に優れており、且つ、従来の急冷磁石粉末を用いたボンド磁石と同等以上の磁気特性を有するボンド磁石を形成することができるので、種々の用途に好適に用いられる。

【0227】図17を参照しながら、ステッピングモータに応用した例を説明する。

【0228】図17は、永久磁石回転子型を備えるステッピングモータ100の構成を模式的に示す分解斜視図である。ステッピングモータ100は、ロータ101と、ロータ101の周辺に設けられたステータ部102とを有している。ロータ101は、外径8mmの外周面

を10極に均等に着磁したボンド磁石を備えている。ステータ部102は、外ヨーク102aおよび102bと、これらと互いに背中合わせに接合された2個の内ヨーク103と、これらの間に収容された励磁コイル104aおよび104bとを備えている。このステッピングモータ100は、1パルス電流に対応する励磁コイル104aおよび104bの起磁力により1ステップ角だけロータ101が変位する動作を行う。いわゆるPM型パルスモータである。

【0229】ロータ101が備えるボンド磁石は、上述した本発明による充填性（成形性）に優れたコンパウンドを用いて形成されており、従来の急冷磁石粉末を用いたボンド磁石と同等以上の磁気特性を有するとともに、機械的特性に優れ、欠けなどが発生する恐れがなく、信頼性に優れている。また、耐熱性にも優れる。

【0230】このような本発明によるコンパウンドを用いて形成されたボンド磁石を備えるステッピングモータは、小型・高性能で且つ信頼性に優れており、プリンターやディスクドライブ装置などのOA機器やカメラやビデオなどのAV機器などに好適に用いられる。

【0231】ロータ101は、種々の方法で製造することができる。例えば、熱硬化性樹脂を用いたコンパウンドを圧縮成形することによって形成しても良いし、熱可塑性樹脂を用いたコンパウンドを射出成形または押出し成形することによって形成してもよい。以下、図18を参照しながら、ロータ101の製造方法を説明する。

【0232】例えば、熱硬化性樹脂を結合剤とするコンパウンドを用いる場合、図18(a)～(c)を参照しながら説明するような成形方法を採用することによって、図18(d)に示すボンド磁石一体成型型のロータ200を作製することができる。

【0233】図18(d)に示したロータ200は、ロータ軸205と、そのまわりに設けられたヨーク208と、ボンド磁石210とを備えている。ボンド磁石210は、ヨーク208の表面212に接着されている。

【0234】ロータ200は、図18(a)から(c)に示した工程で製造される。

【0235】まず、図18(a)に示したように、まず、粉末状のコンパウンド201を収容したフィードボックス203を金型204の上面で摺動させながらコンパウンド201をキャビティ202内に充填する。金型204には、ロータ軸205がその中央に圧入されたヨーク208がセットされており、ロータ軸205を覆うように補助部材207が設けられている。金型204とこれらの間にキャビティ202が形成されている。

【0236】次に、例えば、図18(b)に示すように、上パンチ209を介して、コンパウンド201を圧縮成形することによって、ヨーク208とコンパウンド201の成形体とを物理的に結合させる。

【0237】次に、図18(c)に示すように、ロータ

成形体を金型204から取り出す。補助部材は207は、ロータ軸205およびヨーク208から簡単に取り外され、ロータ軸205、ヨーク208、ボンド磁石210は一体化されている。但し、この状態では、ボンド磁石210はコンパウンドの粉末成形体であり、コンパウンドに含まれている熱硬化性樹脂は未硬化である。

【0238】次に、ボンド磁石210を硬化するため、およびヨーク208とボンド磁石210との界面212における接合を強化するために、コンパウンドを所定の温度で硬化させる。硬化温度および硬化時間は用いる樹脂に応じて適宜設定される。

【0239】本発明によるコンパウンドは、耐熱性に優れた磁粉を含んでいるので、従来よりも高い硬化温度で好適に硬化されるコンパウンドであり得る。従って、従来よりも、耐熱性、機械特性および接着強度に優れたボンド磁石210を形成することができる。さらに、本発明によるコンパウンドは、磁粉自体が耐食性に優れているため、熱硬化処理を大気中で行っても磁石特性の劣化は極めて小さい。従って、熱硬化処理を不活性雰囲気で行う必要がないので工程費用を削減できる。

【0240】上述した成形方法によると、リング状のボンド磁石210を成形しながら、同時に、ヨーク208およびロータ軸205とボンド磁石210とを一体に成形できるので、ロータ200を高い生産性で製造することができる。

【0241】なお、金型204から成形体を取り出してから硬化する例を説明したが、金型204に加熱機構を設けて、金型204内で硬化してもよく、加圧した状態で硬化してもよい。さらに、圧縮成形に限られず、射出成形によってボンド磁石一体成形型ロータを形成することもできる。

【0242】また、本発明によるコンパウンドは、従来の急冷磁石粉末を用いたコンパウンドに比べて高い充填性（成形性および／または流動性）を有するので、小さな間隙（例えば、約2mm幅）に確実に充填することができる。従って、本発明によるコンパウンドは、IPM（Interior Permanent Magnet）型モータに用いられる磁石埋設型ロータ300（図19参照）の製造に好適に用いられる。

【0243】図19に示した磁石埋設型ロータ300は、鉄心（例えば直径80mm、厚さ50mm）301と、鉄心301の中心に形成された回転軸スロット302と、鉄心301の周辺部に形成された複数のアーク状磁石スロット304とを備えている。ここでは、8個のアーク状磁石スロット304が設けられており、それぞれのスロット304は、第1スロット（例えば幅3.5mm）304aと第2スロット（例えば幅1.8mm）304bとを有する2層構造となっている。これらのスロット304aおよび304b内に本発明によるコンパウンドを充填し、ボンド磁石を形成する。ロータ300

の複数の磁石スロット304に対向するようにS極とN極とが交互に配置されたステータ（不図示）と組み合わせることによってIPM型モータが得られる。

【0244】ボンド磁石の成形は、種々の方法で実行することができる。例えば、熱硬化性樹脂を含むコンパウンドを用いる場合、スロット内圧縮成形法（例えば特開昭63-98108号公報参照）を採用することができる。また、熱可塑性樹脂を含むコンパウンドを用いる場合には、押出成形法や射出成形法を採用することができる。何れの成形方法を採用する場合においても、本発明によるコンパウンドは充填性に優れるので、スロット304aおよび304b内に確実に充填でき、且つ、機械特性や耐熱性が優れるとともに、従来と同等以上の磁気特性を有するボンド磁石を形成することができる。従って、従来よりも高性能で高信頼性の小型IPM型モータを作製することが可能になる。

【0245】本発明によるコンパウンドは、図20（a）に示す角度センサ（ロータリーエンコーダ）400が有するボンド磁石の形成に好適に用いられる。

【0246】図20（a）に示したロータリーエンコーダ411は、回転軸413と、回転軸413に連結された回転ドラム416と、回転ドラム416の外周面に接合された複数のボンド磁石415とを有するロータ414と、ロータ414の外周面に離間して配置された検出器417とを備えている。検出器417は、ロータ414からの磁束の変化を検出できるものであれば、特に限定されず、例えば、ホール素子、磁気抵抗素子、磁気インピーダンス効果素子を用いることができる。また、回転軸413はモータ412に連結されている。検出器417は、図示しない計測部に接続されている。

【0247】本発明によるコンパウンドを用いて形成されたボンド磁石415は、例えば、図20（b）に示したような円柱状のものであり、回転ドラム416の外周面に沿ってN極とS極とが交互に配置されている。ボンド磁石415と回転ドラム416との接合は、例えば接着剤等によって行われている。回転ドラム416は、例えば、金属材料を用いて形成され、磁性材料でなくてもよい。

【0248】このロータリーエンコーダ400は、以下のように動作する。モータ412の回転軸413が回転すると、その回転に応じてロータ414が回転する。このとき、ロータ414の外周面に配置されたボンド磁石415が検出器417に形成する磁束の向きが、ロータ414の回転に従って変化する。検出器417はこの磁束の向きの変化に相当する出力信号（電圧の変化量または電流の変化量等）を生成し、計測部（不図示）に出力する。このようにして、モータ412の回転量（角度）が計測される。

【0249】本発明によるコンパウンドは充填性（成形性、流動性）に優れ、従来と同等以上の磁気特性を有

し、且つ、従来よりも機械特性や耐熱性に優れるボンド磁石を形成することができるので、小型で高性能で信頼性の高い角度センサを作製することが可能になる。

【0250】さらに、本発明によるコンパウンドは、図21(a)および(b)を参照しながら説明する磁気ロール用のボンド磁石の形成に好適に用いられる。

【0251】図21(a)は、電子写真用のプロセスカートリッジ501の構造を模式的に示す断面図である。カートリッジ501は、矢印A方向に回転駆動される感光ドラム510と、感光ドラム510を帯電するための帯電ローラ502と、現像装置511と、クリーニング装置512とを一体に有している。

【0252】現像装置511は、トナー513を収容する現像容器509を備え、現像容器509の開口部には感光ドラム510に対向するように現像スリーブ506が回転可能に配設されている。また、現像装置511は弾性ブレード514を備えており、弾性ブレード514は現像スリーブ506に当接し、現像スリーブ506により担持搬送されるトナー513の層厚を規制する。

【0253】図21(b)は、プロセスカートリッジ501が有する現像装置511の構成を模式的に示す断面図である。

【0254】現像スリーブ506は非磁性材料で形成されており、軸受を介して現像容器509に回転可能に支持されている。現像スリーブ(例えば直径10mm)506内には磁気ロール(例えば直径8.5mm)507が配設されている。磁気ロール507の軸部507aには切欠き507a-1が形成されており、切欠き507a-1が現像容器509に係合することによって磁気ロール507が固定されている。磁気ロール507は、感光ドラム510に対向する位置に現像極S1を有し、そ*

*の他の位置にはS2極、N1極およびN2極を有している。

【0255】磁石508は、現像スリーブ506を包囲するように配置されており、現像スリーブ506との間隙gに磁気カーテンを形成し、この磁気カーテンによって間隙内にトナーを保持することによって、トナー漏れが防止される。

【0256】磁気ロール507は本発明によるコンパウンドを用いて形成されているので、従来の磁石と同等以上の磁気特性を有し、且つ、機械特性や耐熱性にも優れる。従って、磁気ロール507や現像スリーブ506を従来よりも更に小型化することが可能であるとともに、性能を向上することができる。本発明によるコンパウンドを用いて形成された磁気ロールは、複写機やレーザービームプリンタ内の現像装置や現像カートリッジにも適用できる。

【0257】

【実施例】(実施例1) 下記の表7に示す組成を有し、総量が600グラム(g)となるように純度99.5%以上のB、Fe、Ti、Nd、およびNbを秤量し、アルミナ製増埴に投入した。その後、これらの合金原料を高周波加熱によって圧力70kPaのアルゴン(Ar)雰囲気中で溶解し、合金溶湯を作製した。溶湯温度が1500℃に到達した後、水冷した銅製鑄型上に鑄込み、平板状の合金を作製した。

【0258】得られた合金を粉砕した後、25ミリグラム(mg)の粉砕片を溶解し、Ar気流中で示差熱分析(DTA)を用い、冷却速度20℃/分で合金溶湯の凝固過程を解析した。測定結果を表7に示す。

【0259】

【表7】

試料 No.	合金組成(原子%)					凝固温度(℃)	
	Nd	Fe	B	Ti	Nb	1st.	2nd.
1	9.0	残部	12	3	0.5	1185	1120
2	9.0	残部	14	3	1.0	1174	1075
3	8.7	残部	11	2	0.3	1196	1133
4	9.0	残部	14	4	1.5	1160	1068
5	9.0	残部	13	3	0.7	1175	1112
6	9.0	残部	14	4	—	1240	1145
7	9.0	残部	14	3	—	1231	1140

【0260】ここで、試料No. 1~5は、Tiに加えてNbを添加した試料であり、試料No. 6~7はNbを添加しなかった試料である。

【0261】表7の最右欄には、各試料No. 1~7の合金溶湯について、合金溶湯の凝固過程を特徴付ける温度を記載している。「1st」と表記されている温度は、合金溶湯を冷却する過程で最初の凝固が生じた温度(「液相線温度」)を示している。「2nd」と表記さ

れている温度は、合金溶湯を冷却する過程で液相線温度より低い温度で次の凝固が生じた温度(「凝固点」)を示している。これらの温度は、具体的には、示差熱分析計(DTA)によって発熱ピークが観測された温度である。

【0262】図8は、試料No. 2(Nb添加)および試料No. 6(Nb無添加)のDTAを示すグラフである。図8から明らかなように、試料No. 2の場合、試

料No. 6に比較して、冷却過程で生じる最初の発熱ピークの温度、すなわち液相線温度（「1st」）が60℃以上も低下している。

【0263】この最初の発熱ピークは、TiB₂などのチタンとホウ素の化合物相が析出することに起因している可能性がある。本実施例では、Tiおよびホウ素を従来よりも高濃度に添加しているため、チタンとホウ素の化合物（高融点）が形成されやすく、その析出温度は高いと推定される。Tiを添加しない従来の組成系（Fe₂B/Nd₂Fe₁₄B系）では、合金溶湯の液相線温度は1200℃程度以下であった。本発明では、TiとともにNbが添加されることにより、このような化合物の析出温度が下がり、合金溶湯の液相線温度が低下したものと考えられる。

【0264】試料No. 6（比較例）の合金を用いる場合は、1350℃程度の高い出湯温度でストリップキャストニングを実行する必要があるが、試料No. 2（実施例）の合金を用いる場合は、出湯温度を例えば約12*

*50℃程度に設定することが可能である。このように出湯温度が低減されると、溶湯の冷却過程で早くに析出するR₂Fe₁₄B型化合物やTiB₂の粗大化が抑制され、磁石特性が向上する。

【0265】（実施例2）下記の表2に示す組成を有し、総量が600gとなるように純度99.5%以上のB、Fe、Ti、Nd、およびCを秤量し、アルミナ製増埴に投入した。その後、これらの合金原料を高周波加熱によって圧力70kPaのアルゴン（Ar）雰囲気中で溶解し、合金溶湯を作製した。溶湯温度が1500℃に到達した後、水冷した銅製铸型上に铸込み、平板状の合金を作製した。

【0266】得られた合金を粉碎した後、25ミリグラム（mg）の粉碎片を溶解し、Ar気流中で示差熱熱量計（DTA）を用い、冷却速度20℃/分で合金溶湯の凝固過程を解析した。測定結果を表8に示す。

【0267】

【表8】

試料 No.	合金組成（原子%）						凝固温度（℃）	
	Nd	Fe	B	C	Ti	M	1st.	2nd.
8	9.0	鉄部	12.6	1.4	4	0	1200	1012
9	9.0	鉄部	11.2	2.8	4	Cu0.4	1187	1009
10	9.0	鉄部	9.9	1.1	3	Nb0.5	-	989
11	9.0	鉄部	11.7	1.3	3	0	1183	1002
12	9.0	鉄部	12.6	1.4	5	Si1	1210	1047
13	9.0	鉄部	13.3	0.7	3	Nb1	1168	1103
14	9.0	鉄部	14	0	4	0	1240	1145
15	9.0	鉄部	13	0	3	0	1225	1120

【0268】ここで、試料No. 8～13は、TiとともにCを添加した試料であり、試料No. 14～15はCを添加しなかった試料である。

【0269】表8の最右欄には、各試料No. 8～15の合金溶湯について、合金溶湯の凝固過程を特徴付ける温度を記載している。「1st」と表記されている温度は、合金溶湯を冷却する過程で最初の凝固が生じた温度（「液相線温度」）を示している。「2nd」と表記されている温度は、合金溶湯を冷却する過程で液相線温度より低い温度で次の凝固が生じた温度（「凝固点」）を示している。これらの温度は、具体的には、示差熱熱量計（DTA）によって発熱ピークが観測された温度である。

【0270】図9は、試料No. 8（C添加）および試料No. 14（C無添加）のDTAを示すグラフである。図9から明らかなように、試料No. 8の場合、試料No. 14に比較して、冷却過程で生じる最初の発熱ピークの温度、すなわち液相線温度（「1st」）が40℃程度も低下している。

【0271】この最初の発熱ピークは、TiB₂などのチタンとホウ素の化合物相が析出することに起因してい

る可能性がある。本実施例では、Tiおよびホウ素を従来よりも高濃度に添加しているため、チタンとホウ素の化合物（高融点）が形成されやすく、その析出温度は高いと推定される。Tiを添加しない従来の組成系（Fe₂B/Nd₂Fe₁₄B系）では、合金溶湯の液相線温度は1200℃程度以下であった。本発明の実施例では、TiとともにCが添加されていたことにより、このような化合物の析出温度が下がり、合金溶湯の液相線温度が低下したものと考えられる。

【0272】試料No. 14の合金を用いる場合は、1350℃程度の高い出湯温度でストリップキャストニングなどを実行する必要があるが、試料No. 8（実施例）の合金を用いる場合は、出湯温度を例えば約1300℃程度に設定することが可能である。このように出湯温度が低減されると、溶湯の冷却過程で早くに析出するR₂Fe₁₄B型化合物やTiB₂の粗大化が抑制され、磁石特性が向上する。

【0273】次に、表8に示す組成を有し、総量が15gとなるように純度99.5%以上のB、Fe、Ti、Nd、およびCを秤量し、底部に直径0.8mmのオリフィスを有する石英増埴に投入した。その後、これらの

合金原料を高周波加熱によって圧力1.33~47.92 kPaのAr雰囲気中で溶解し、合金溶湯を作製した。溶湯温度が1350℃に到達した後、湯面をArガスで加圧し、オリフィスから溶湯を0.7 mm下方に位置する冷却ロールの外周面へ滴下した。冷却ロールは純銅製であり、外周面速度が15 m/秒となるように回転させていた。このような冷却ロールとの接触により、合金溶湯は急冷され、凝固した。こうして、幅2~3 mm、厚さ20~50 μ mの連続した急冷凝固合金の薄帯が得られた。図10は、試料No. 8および試料No. 14のXRDのパターンを示すグラフである。図10から

明らかのように、試料No. 8の場合、非晶質が大部分を占めているのに対して、試料No. 14では、結晶組織の割合が多い。

【0274】この急冷凝固合金薄帯をAr雰囲気中において600~800℃の熱処理温度範囲で6~8分間保持し、その後、室温まで冷却した。この後、VSMを用いて急冷合金薄帯（長さ3~5 mm）の磁気特性を評価した。測定結果を表9に示す。

【0275】

【表9】

試料No	B_c (T)	H_{c2} (kA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m ³)	熱処理温度(℃)
8	0.81	987	107	760
9	0.77	668	90.6	740
10	0.88	788	124	700
11	0.81	764	101	780
12	0.78	955	100	740
13	0.81	1080	107	600
14	0.82	884	111	720
15	0.81	758	97.7	760

【0276】次に、表8の試料No. 13と同一の組成を有する原料合金を用意し、図3に示すようなストリップキャスト装置を用いて、急冷合金を作製した。具体的には、総量が10 kgとなるように純度99.5%以上のB、Fe、Ti、Nd、およびCを秤量し、溶解槽に投入した。その後、これらの合金原料を高周波加熱によって圧力30 kPaのAr雰囲気中で溶解し、合金溶湯を作製した。溶湯温度が1350℃に到達した後、溶湯をシュートに流した。溶湯はシュート上をスムーズに流れ、冷却ロールにより冷却された。冷却ロールの表面周速度は12 m/秒とした。

【0277】こうして得られた急冷合金（平均厚さ：80 μ m程度）をAr雰囲気中において740℃の熱処理温度範囲で6~8分間保持し、その後、室温まで冷却した。その後、VSMを用いて急冷合金の磁気特性を評価した。

【0278】測定結果は、残留磁束密度 B_r が0.79 T、保磁力 H_c が1090 kA/m、最大磁気エネルギー積 $(BH)_{max}$ が102 kJ/m³であった。この磁気特性を表9に示す試料No. 8の磁気特性と比較すると、ほぼ同等の特性が得られたことがわかる。

【0279】次に、Cが(B+C)の合計に占める割合（原子比率p）が0.25以下の試料と、pが0.25を超える試料について、XRD及び減磁曲線を測定した。

【0280】図11は、Nd₅Fe₇₃B_{12.5}C_{1.5}Ti₁（実施例：p=0.1）及びNd₅Fe₇₃B₇C₇Ti₁（比較例：p=0.5）の熱処理前におけるXRDパターンを示している。これらの試料は、組成は異なる

が、いずれも前述した実施例と同様にして作製された。なお、図12は、Nd₅Fe₇₃B_{12.5}C_{1.5}Ti₁（実施例）及びNd₅Fe₇₃B₇C₇Ti₁（比較例）の減磁曲線を示している。

【0281】Cの比率pが0.25を超えて0.5に達する場合、図11に示されるように、Ti-Cの回折ピークが顕著に観察される。このようにCが多過ぎると、急冷合金中にTi-C相が多く析出するため、熱処理後の構成相比率が所望範囲からずれ、図12に示すように減磁曲線の角形性が悪くなる。Cが(B+C)の合計に占める割合（原子比率p）が0.25以下であれば、このような問題は生じなかった。

【0282】（実施例3）本実施例では、図3に示すストリップキャスト装置を用いた。

【0283】まず、原子比率でNd₅Fe₇₃B_{12.5}C_{1.5}Ti₁Nb₁の組成を有するように、純度99.5%以上のB、C、Fe、Nb、Ti、およびNdの金属を用いて総量が5 kgとなるように秤量した。これらの金属をアルミナ製坩堝内に投入し、圧力35 kPaのアルゴン雰囲気中で高周波加熱により溶解した。溶解温度は1350℃とした。

【0284】溶解後、坩堝を傾転し、溶湯を多孔質セラミックス製のシュート上に供給し、冷却ロールの表面へ導いた。シュートの表面温度はヒータによって600℃に保持した。また、シュート上において溶湯がロールへ向かってスムーズに流れるように、シュートを水平方向に対して20°（=角度 α ）だけ傾けた。また、溶湯は、ロールの直上部から坩堝の位置へ40°（=角度 β ）だけ傾斜した位置に注がれるようにシュートを配置

した。なお、本実施例におけるシュートは、図4に示すように、増焔から受けた溶湯の流れを2条に分けてロールへ供給するための溶湯ガイドを有している。

【0285】冷却ロールは14m/秒の表面周速度で回転させた。増焔の傾転角を調整することにより、シュート上を流れる溶湯の供給速度を、溶湯の1つの流れあたり1.5kg/分になるよう調整した。本実施例では、表面の中心線粗さRaが5μmの純銅製ロールを用いた。ロール温度の上昇はロール内部の水冷によって防止した。

【0286】得られた急冷合金の組織をCuKαの特性X線により調べたところ、Nd₂Fe₁₄Bの回折ピークとともに、Fe₂₃B₆およびα-Feが混在している急冷合金組織であることを確認した。

【0287】図13は、得られた急冷合金の粉末XRDを示し、図14は振動型磁気計を用いて測定した急冷合

金の減磁曲線を示す。図13および図14において、「as-cast」と記載している曲線が急冷合金に関するものである。

【0288】次に、急冷合金をパウermilによって粉碎した。その後、アルゴンガスで攪気し、炉内温度を740℃に保持したフープベルト式連続熱処理炉内に急冷合金粉末を供給して熱処理を施した。このとき給粉速度は30g/分に保持した。

【0289】熱処理後における粉末XRDおよび減磁曲線も、それぞれ、図13および図14に示している。図13および図14において、熱処理後のデータは「as-annealed」と記載された曲線で示されている。熱処理後の磁気特性を以下の表10に示す。

【0290】

【表10】

	磁気特性		
	B _r (T)	H _{co} (kA/m)	(BH) _{max} (kJ/m ³)
実施例3	0.80	1027.8	105.61

【0291】図14および表10からわかるように、本実施例における鉄基永久磁石は良好な磁気特性を発揮した。

【0292】次に、熱処理後の微細金属組織を透過型電子顕微鏡(TEM)にて観測した。その結果、熱処理後の組織内には、平均粒径40nm程度の結晶粒と、その粒界に10nm程度の微細結晶粒とが存在していることがわかった。また、HRTEM(高解像透過電子顕微鏡)による金属組織解析の結果、平均粒径40nm程度の結晶粒はNd₂Fe₁₄Bであり、その粒界にはFe₂₃B₆またはFe₂₃Bの鉄基融化物が存在していることを確認した。

【0293】(実施例4)本実施例でも、図3に示すストリップキャスト装置を用いた。

【0294】まず、原子比率でNd₂Fe₁₄B₁₂C₁、Ti₂Nb₁の組成を有するように、純度99.5%以上のB、C、Fe、Nb、Ti、およびNdの金属を用いて総量が5kgとなるように秤量した。これらの金属をアルミナ製増焔内に投入し、圧力35kPaのアルゴン雰囲気中で高周波加熱により溶解した。溶解温度は1350℃とした。

【0295】溶解後、増焔を傾転し、溶湯を多孔質セラミックス製のシュート上に供給し、冷却ロールの表面へ導いた。シュートの表面温度はヒータによって600℃に保持した。また、シュート上において溶湯がロールへ向かってスムーズに流れるように、シュートを水平方向に対して20°(=角度α)だけ傾けた。また、溶湯は、ロールの直上部から増焔の位置へ40°(=角度β)だけ傾斜した位置に注がれるようにシュートを配置した。本実施例でも、図4に示すシュートを用いた。

【0296】本実施例では、表11に示す表面周速度で冷却ロールを回転させた。また、増焔の傾転角を調整することにより、シュート上を流れる溶湯の供給速度(1つの流れあたり)を表11に示すように調整した。溶湯の1つの流れの幅は10mmとして、ロール周速度および溶湯供給速度が急冷に与える影響を調べた。

【0297】なお、本実施例でも、実施例3と同様に、表面の中心線粗さRaが5μmの純銅製ロールを用いた。ロール温度の上昇はロール内部の水冷によって防止した。

【0298】

【表11】

		1つの溶湯流れあたりの溶湯供給速度 (kg/分)									
		0.5	0.7	1.0	1.3	1.5	2.0	2.5	3.0	3.5	4.0
ロール 表面 周速度 Vs (m/秒)	10	×	△	○	○	○	○	△	△	△	△
	12	×	○	○	○	○	○	△	△	×	×
	14	×	○	○	○	○	○	△	×	×	×
	16	×	△	○	○	○	○	△	×	×	×
	18	×	△	○	○	○	○	×	×	×	×
	20	×	△	○	○	○	△	×	×	×	×
	22	×	×	○	○	△	△	×	×	×	×
	24	×	×	△	△	×	×	×	×	×	×
	26	×	×	△	×	×	×	×	×	×	×

【0299】表11において、「○」は、安定して急冷合金を作製できた場合を示している。これに対し、

「×」はスプラッシュが発生し、所望の組織を有する急冷合金を安定して得ることができなかった場合を示している。「△」は、安定した急冷合金の作製がしばしば観察されたものの、断続的にスプラッシュが発生した場合を示している。

【0300】表11から、ロール表面周速度が10m/秒以上18m/秒以下の場合、1つの溶湯流れあたりの溶湯供給速度が1.0kg/分以上2.0kg/分以下で安定した急冷が実現していることがわかる。ロール表面周速度が速くなるほど、急冷合金薄帯は薄くなり、また、スプラッシュも発生しやすくなる。

【0301】溶湯の1つの流れあたりの溶湯供給速度は、急冷合金薄帯の厚さにはさほど影響しないが、急冷合金薄帯の幅を変化させる。溶湯供給速度が大きいほど、急冷合金薄帯の幅が広がる。

【0302】急冷合金薄帯の厚さは、ロール表面周速度に依存して変化する。すなわち、ロール表面周速度が速いほど、急冷合金薄帯は薄くなる。例えば、ロール表面周速度が10m/秒のとき、急冷合金薄帯の平均厚さは100μm程度であり、ロール表面周速度が22m/秒のとき、急冷合金薄帯の平均厚さは45～80μm程度である。

【0303】前述したように、急冷合金薄帯の厚さが厚いほど（例えば80μmを超える厚さを持つ場合）、急冷合金を粉砕することによって、等軸形状に近い形状の粉末粒子が得られやすい。アスペクト比が1に近い粒子が多く含まれる粉末を用いてボンド磁石を作製すれば、磁石特性に優れたボンド磁石を得ることができる。

【0304】なお、ロールの表面周速度14m/秒、溶湯の1つの流れあたりの溶湯供給量1.3kg/分の条件で作製された急冷合金の組織をCuKαの特性X線により調べた。その結果、Nd₂Fe₁₄Bの回折ピークとともに、Fe₂₃B₆およびα-Feが混在している急冷合金組織であることを確認した。

【0305】

【発明の効果】本発明によれば、ストリップキャスト法を用い、T₁を原料合金に添加した希土類合金溶湯の急冷を行なうことにより、磁石に必要な希土類元素の量を低減しながら保磁力および磁化が十分に高い優れた磁気特性を発揮する鉄基希土類磁石用原料合金を量産することができる。

20 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明で好適に使用されるストリップキャスト装置の構成例を示す図である。

【図2】本発明により製造されるナノコンポジット磁石の組織を示す図である。

【図3】本発明で好適に使用されるストリップキャスト装置の他の構成例を示す図である。

【図4】ストリップキャスト装置で用いられる合金溶湯のシュート（案内手段）を示す斜視図である。

30 【図5】ストリップキャスト法に用いる冷却ロールの表面における中心線粗さRaが合金溶湯の急冷に与える影響を示す図である。

【図6】メルトスピニング法に用いる冷却ロールの表面における中心線粗さRaが合金溶湯の急冷に与える影響を示す図である。

【図7】ストリップキャスト法で形成された急冷合金の組織構造を示す断面図であり、(a)はT₁を添加したR-T-B系合金の断面を示し、(b)はT₁を添加しない従来のR-T-B系合金の断面を示している。

40 【図8】試料No. 2および試料No. 6のDTAを示すグラフである。

【図9】試料No. 8および試料No. 14のDTAを示すグラフである。

【図10】結晶化熱処理前（as-cast）の試料No. 8および試料No. 14の粉末X線回折データを示すグラフである。

【図11】Nd₂Fe_{7.3}B_{12.5}C_{1.1}Ti₁（実施例：p=0.1）及びNd₂Fe_{7.3}B₇C₁Ti₁（比較例：p=0.5）の熱処理前におけるXRDパターンを示している。

50 【図12】Nd₂Fe_{7.3}B_{12.5}C_{1.1}Ti₁（実施例）及

び $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$, B , C , Ti , (比較例)の減磁曲線を示している。

【図13】本発明の実施例に関する粉末XRDのグラフである。「as-cast」と記載している曲線が急冷合金に関するものであり、「as-annealed」と記載している曲線が熱処理後における合金に関するものである。

【図14】振動型磁力計を用いて測定した本発明の実施例に関する減磁曲線のグラフである。「as-cast」と記載している曲線が急冷合金に関するものであり、「as-annealed」と記載している曲線が熱処理後における合金に関するものである。

【図15】本発明によるナノコンポジット磁粉および従来の急冷磁石粉末の加熱質量増加率を示すグラフである。

【図16】粒度分布の異なるナノコンポジット磁粉を用いて形成されたボンド磁石成形体の密度を示すグラフである。

【図17】本発明による実施形態の永久磁石回転子型を備えるステッピングモータ100の構成を模式的に示す分解斜視図である。

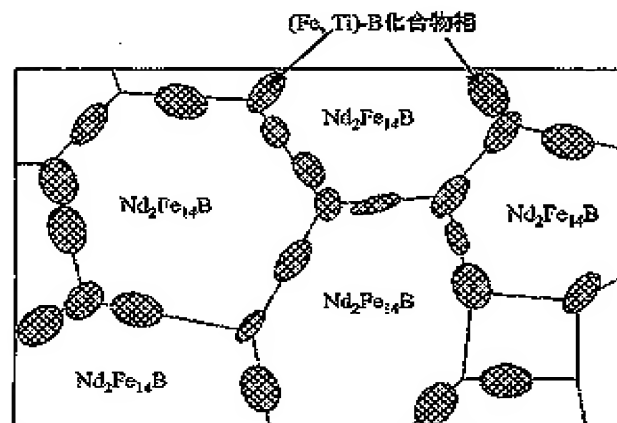
【図18】(a)～(d)は、本発明による実施形態のボンド磁石一体成型型のロータ200およびその成形工程を示す図である。

【図19】本発明による実施形態の磁石埋設型ロータ300の構造を示す模式図である。

【図20】(a)および(b)は、本発明による実施形態のロータリーエンコーダ411の構造を模式的に示す図である。

【図21】(a)および(b)は、本発明による実施形態の磁気ロール507を備える電子写真用のプロセスカートリッジ501の構造を模式的に示す断面図である。*

【図2】



*【符号の説明】

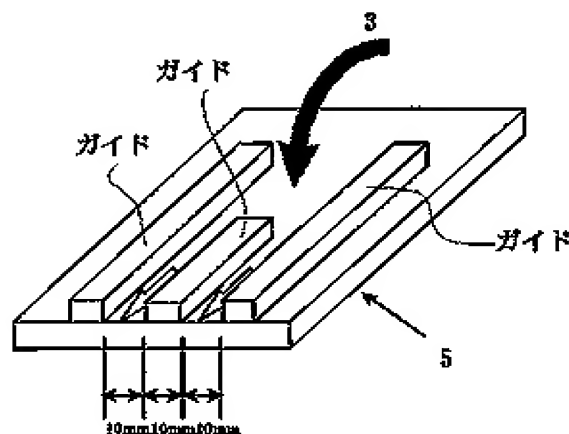
- 1 溶解炉
- 2 溶解炉の底部出口
- 3 合金溶湯
- 4 鋸
- 5 シュート（溶湯の案内手段）
- 6 合金溶湯のパドル
- 7 冷却ロール
- 8 急冷合金

10 【要約】

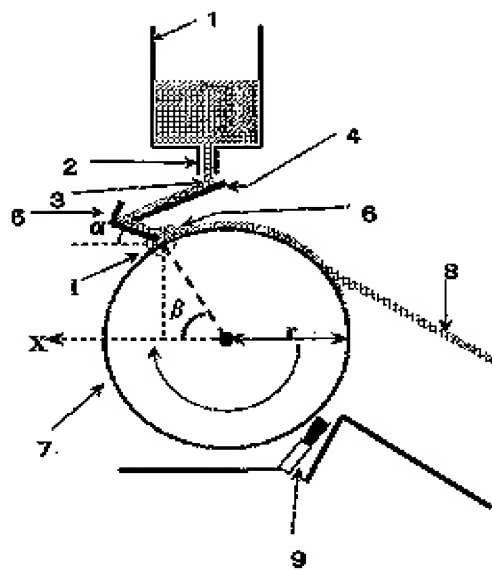
【課題】希土類元素が少ないながらも高い保磁力および磁化を示し、減磁曲線の角形性にも優れた永久磁石を製造する。

【解決手段】組成式が $(\text{Fe}_{1-x}\text{T}_x)_2(\text{B}_{1-y}\text{C}_y)_z$ (B, C, R, Ti, M)で表現される合金溶湯を用意する。TはCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素、RはY（イットリウム）および希土類金属からなる群から選択された1種以上の元素、Mは、Al, Si, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の元素であり、組成比率（原子比率）x, y, z, m, n, およびpが、それぞれ、 $10 < x \leq 25$ 原子%、 $7 \leq y < 10$ 原子%、 $0.5 \leq z \leq 12$ 原子%、 $0 \leq m \leq 0.5$ 、 $0 \leq n \leq 10$ 原子%、および $0 \leq p \leq 0.25$ を満足する。この合金溶湯を、案内面が水平方向に対して $1 \sim 80^\circ$ の角度を形成するシュート上に供給し、冷却ロールとの接触領域に合金溶湯を移動させる工程と、合金溶湯を冷却ロールによって急冷し、 $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相を含む急冷合金を作製する冷却工程とを行う。

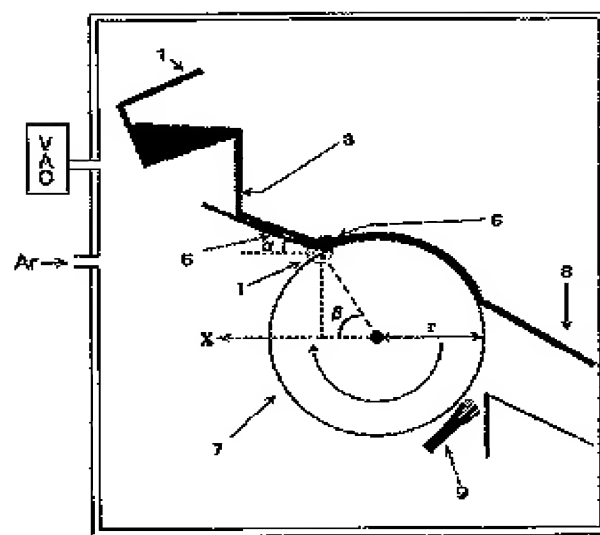
【図4】



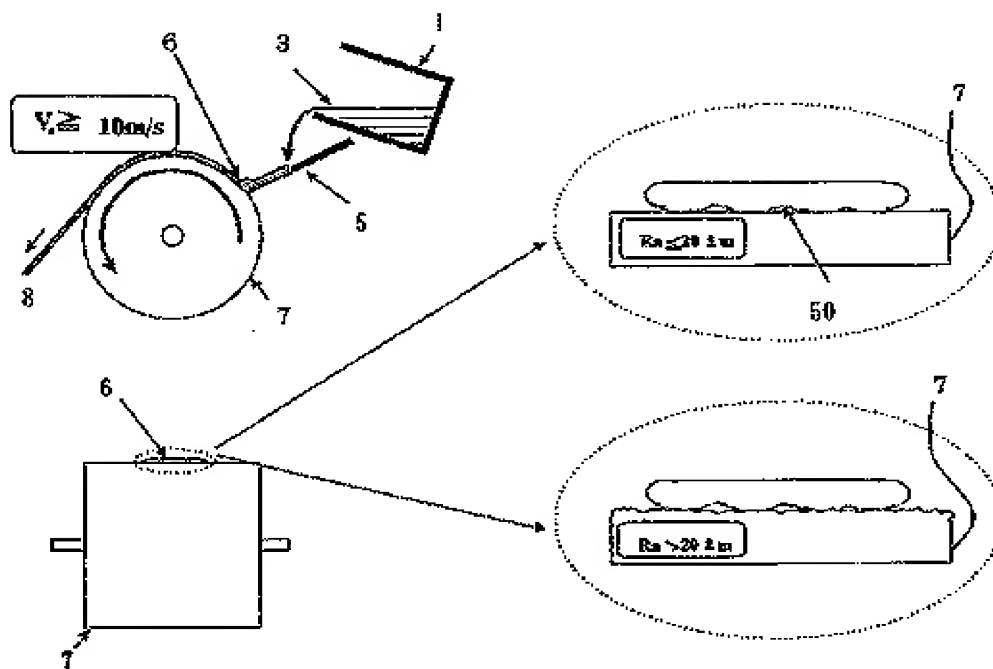
【図1】



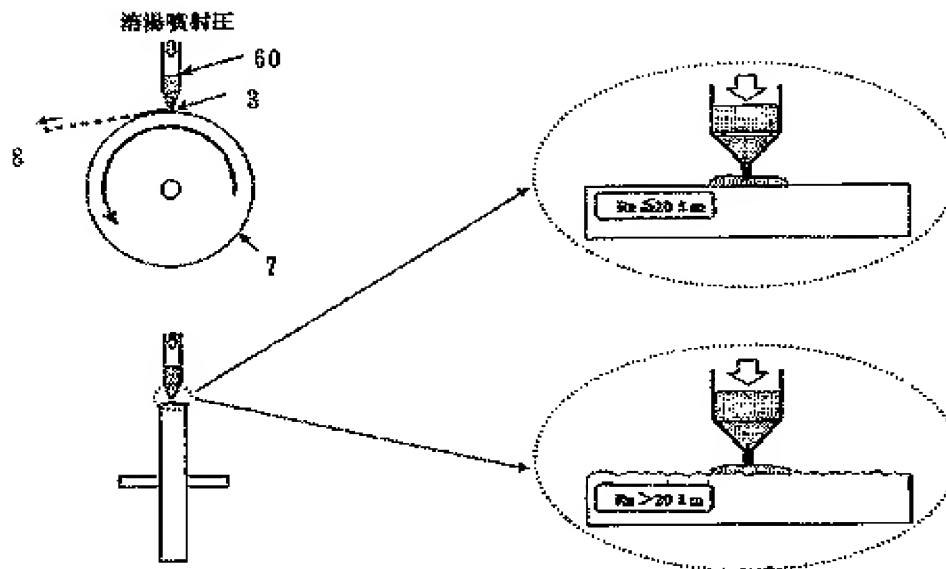
【図3】



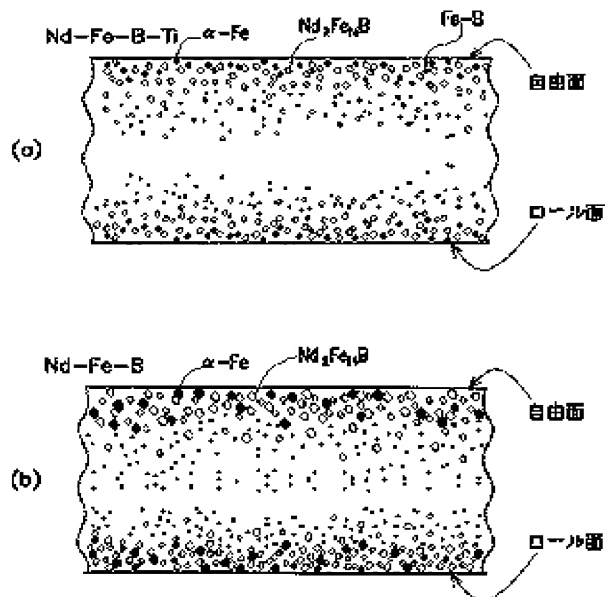
【図5】



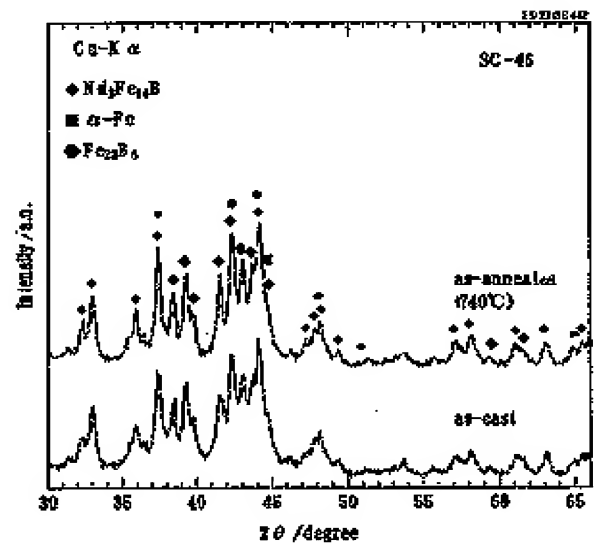
【図6】



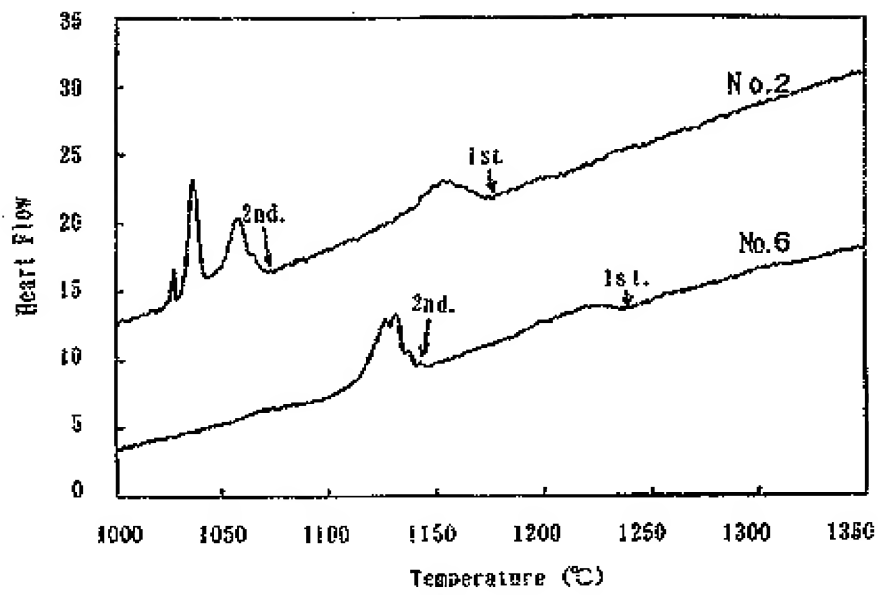
【図7】



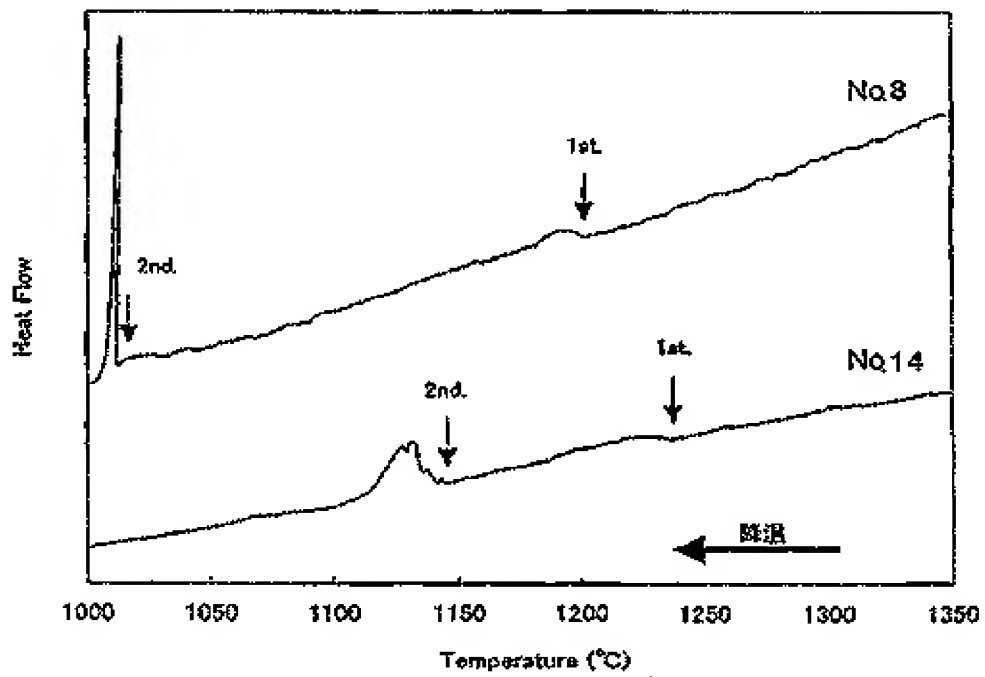
【図13】



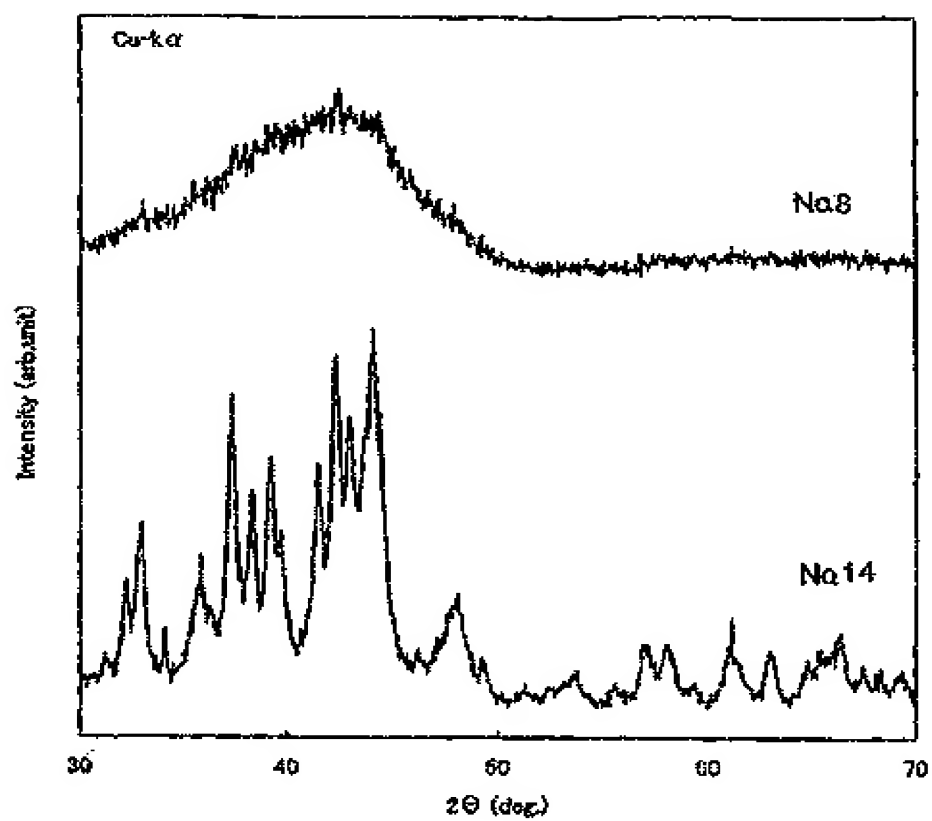
【図8】



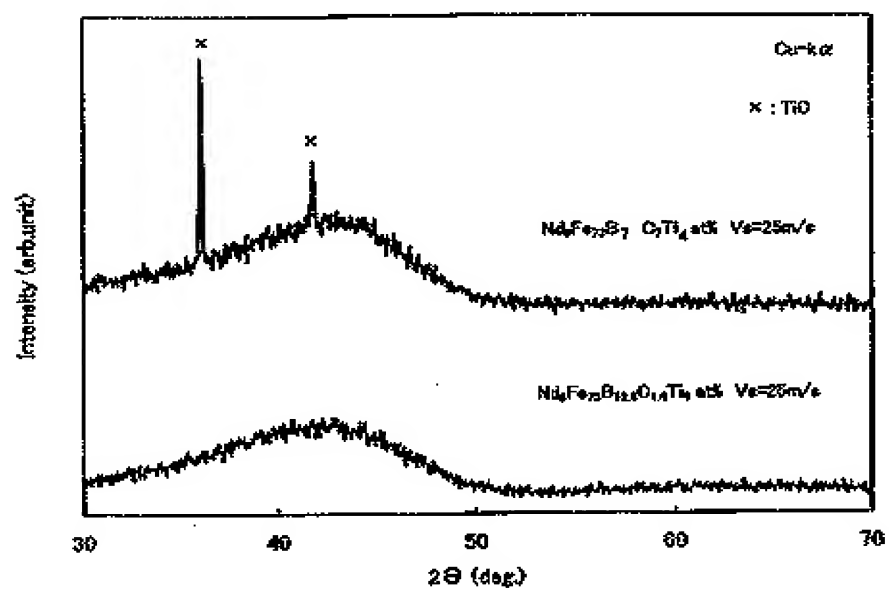
【図9】



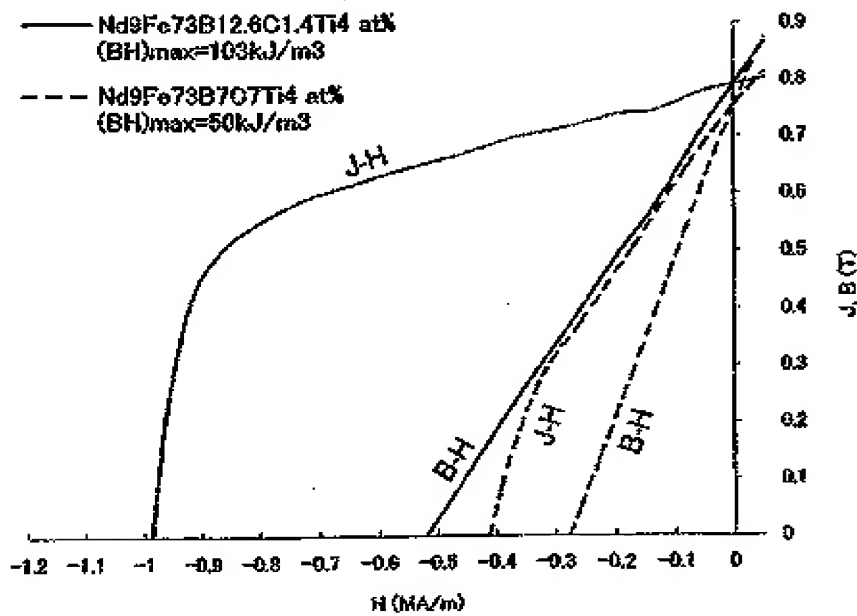
【図10】



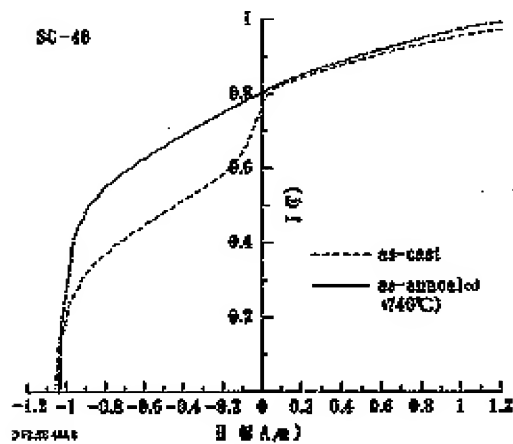
【図11】



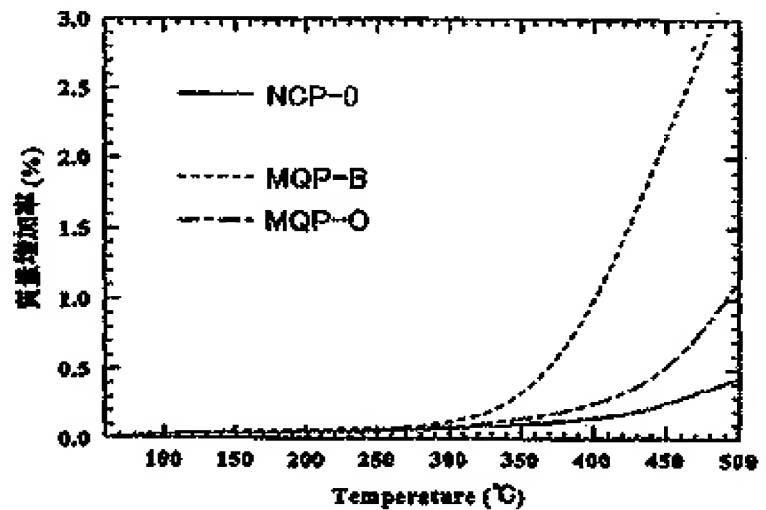
【図12】



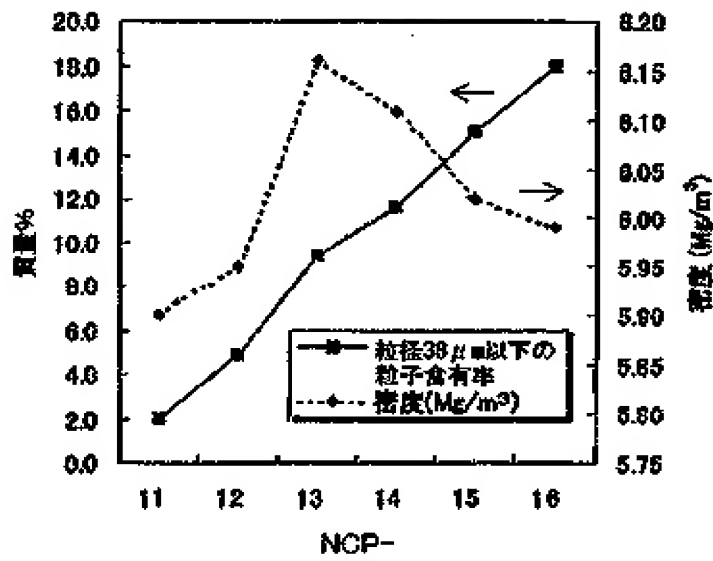
【図14】



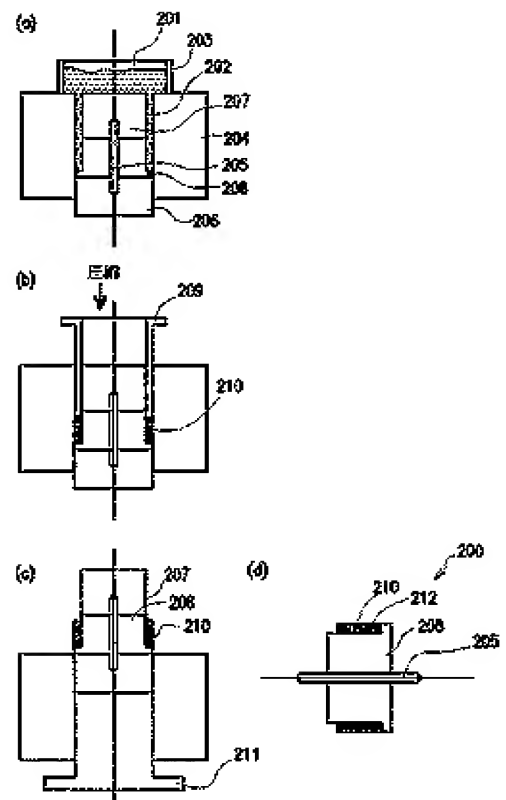
【図15】



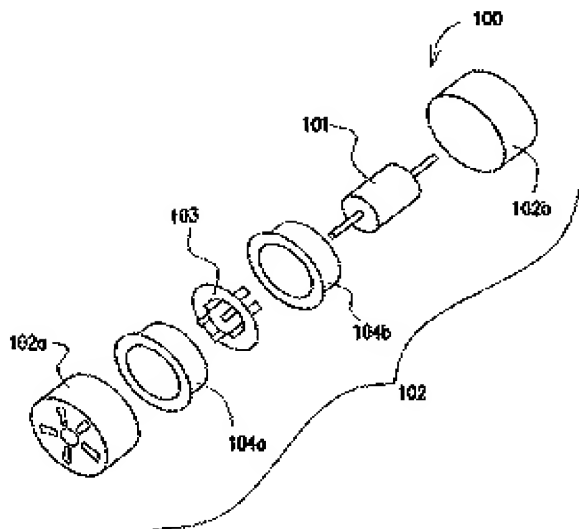
【図16】



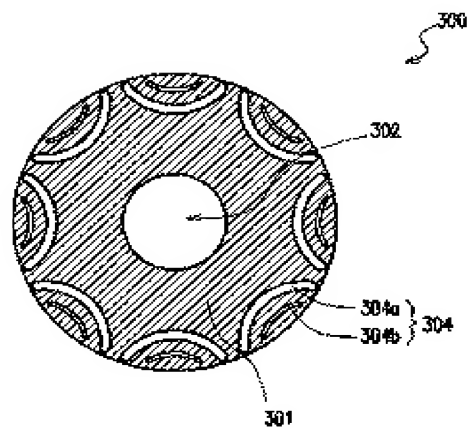
【図18】



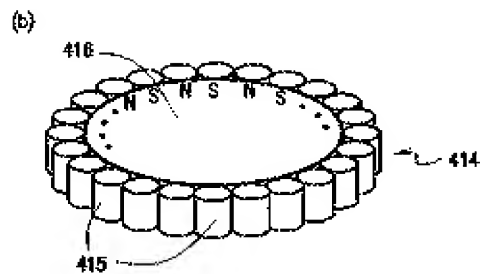
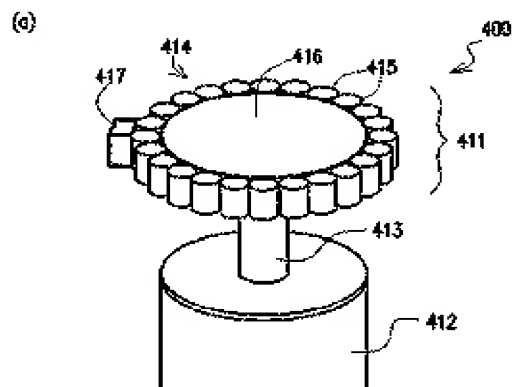
【図17】



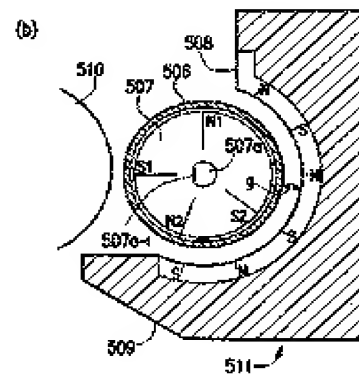
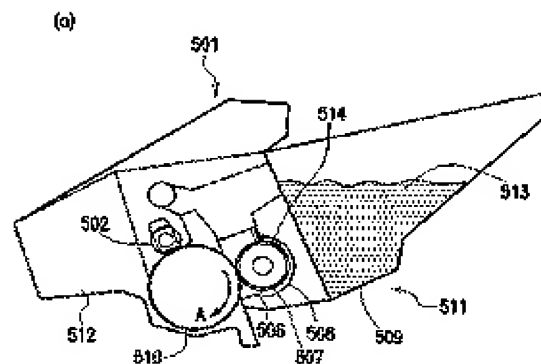
【図19】



【図20】



【図21】



フロントページの続き

(31)優先権主張番号 特願2001-307819(P2001-307819)
 (32)優先日 平成13年10月3日(2001. 10. 3)
 (33)優先権主張国 日本(JP)

早期審査対象出願

(56)参考文献 特開 平9-155513(JP, A)
 特開2000-79449(JP, A)
 特開 昭61-140350(JP, A)
 国際公開00/3403(WO, A1)

(58)調査した分野(Int.Cl.⁷, DB名)

B22D 11/06

C21D 6/00

C22C 38/00